

Директору ІЗНХ НАН України,
Академіку НАН України
В.І. Пехньо
Зав. відділом № 6
А.Г. Білоуса

Службова записка

Вельмишановний Василь Іванович,

Прошу Вас підписати заяву та документи на патент України «Матеріал з високою діелектричною проникністю на основі лантану, літію, натрію та титану», автори: Білоус А.Г., В'юнов О.І., Плутенко Т.О., Федорчук О.П., Янчевський О.З.

Документи для оплати збору за розгляд заявки надійдуть протягом місяця від моменту подачі заявки. Після цього буде подано наступну службову записку щодо сплати збору за розгляд заявки на патент.

Зав. відділом № 6

А.Г. Білоус



ДЕРЖАВНА ПОДАТКОВА АДМІНІСТРАЦІЯ УКРАЇНИ
7494/10/15-02 ДЕРЖАВНА ПОДАТКОВА ІНСПЕКЦІЯ у
від 05.10.05 р. СВЯТОШИНСЬКОМУ р-ні м. Києва

03115, м. Київ-115, вул. Верховинна, 9, тел. 452-90-15

1692/10/15-03
15.11.05

Д О В І Д К А № 56/15-03/

Видана Інституту загальної та
неорганічної хімії ім. В.І. Вернадського
код 05417383

в тому, що він перебуває на обліку в ДПІ Святошинського р-ну
м. Києва, зареєстрований 26.10.05 р. за № 67-НП

Згідно Закону України "Про оподаткування прибутку
підприємств" від 22.05.97р. №283/97-ВР ст.7.11.1. зареєстрований як
неприбуткова організація.

код ознаки неприбутковості -0014

В разі отримання доходів із джерел, ніж ті що вказані в ст.7.11.3
Закону України "Про оподаткування прибутку підприємств" від
22.05.1997р. №283/97-ВР, ви повинні сплатити податок на прибуток.

В.о. заступник
начальника ДПІ
у Святошинському
р-ні м. Києва



Н.І.Чикаловець

Вик.Товмаш М.С.
452-77-68

Порядковий номер заявки, визначений заявником		Дата одержання		
(22) Дата подання заявки	Пріоритет	(51) МПК	ЕВ	(21) Номер заявки
		C04B 35/00 H01G 4/12		
(86)	Реєстраційний номер та дата подання міжнародної заявки, установлені відомством-одержувачем			
(87)	Номер і дата міжнародної публікації міжнародної заявки			
ЗАЯВА про видачу патенту України		МІНІСТЕРСТВО ЕКОНОМІЧНОГО РОЗВИТКУ І ТОРГІВЛІ УКРАЇНИ Державне підприємство "Український інститут інтелектуальної власності" вул. Глазунова, 1, м. Київ-42, 01601		
Подаючи нижчезазначені документи, прошу (просимо) видати: ☐ патент України на винахід ☐ позицію виключено ☒ патент України на корисну модель				
(71) Заявник(и)			Код за ЄДРПОУ (для українських заявників)	
Інститут загальної та неорганічної хімії ім. В.І. Вернадського НАН України 03680, м. Київ-142, пр. Палладіна, 32/34			05416930	
(зазначається повне ім'я або найменування заявника(ів), його (їх) місце проживання або місцезнаходження та код держави згідно із стандартом BOIB ST.3. Дані про місце проживання винахідників-заявників наводяться за кодом (72)				
Прошу (просимо) встановити пріоритет заявки пунктів формули винаходу за заявкою № _____ за датою: ☐ подання попередньої заявки в державі - учасниці Паризької конвенції (навести дані за кодами (31), (32), (33)) ☐ подання до Установи попередньої заявки, з якої виділено цю заявку (навести дані за кодом (62)) ☐ подання до Установи попередньої заявки (навести дані за кодом (66))				
(31) Номер попередньої заявки	(32) Дата подання попередньої заявки	(33) Код держави подання попередньої заявки згідно із стандартом BOIB ST.3	(62) Номер та дата подання до Установи попередньої заявки, з якої виділено цю заявку	(66) Номер та дата подання до Установи попередньої заявки
(54) Назва винаходу (корисної моделі) Матеріал з високою діелектричною проникністю на основі літію, натрію лантану та титану				
(98) Адреса для листування 03680, м. Київ, пр. Палладіна, 32/34 ІЗНХ НАНУ Телефон 424-22-11 Телеграф Факс				
(74) Повне ім'я та реєстраційний номер представника у справах інтелектуальної власності або повне ім'я				

іншої довіреної особи

☐ Прошу (просимо) прискорити публікацію заявки

Перелік документів, що додаються	Кількість арк.	Кількість прим.	Підстави щодо виникнення права на подання заявки й одержання патенту (без подання документів), якщо винахідник(и) не є заявником(ами): ☐ є документ про передачу прав винахідником(ами) або роботодавцем(ями) правонаступнику(ам) ☐ є документ про право спадкування
☒ опис винаходу	5	3	
☒ формула винаходу	1	3	
• креслення та інші ілюстративні матеріали			
☒ реферат	1	3	
☒ документ про сплату збору за подання заявки	1	1	
☐ документ, який підтверджує наявність підстав для зменшення збору або звільнення від сплати збору			
☐ документ про депонування штаму			
☐ копія попередньої заявки, яка підтверджує право на пріоритет			
☐ переклад заявки українською мовою			
☐ документ, який підтверджує повноваження довіреної особи (довіреність)			
☐ інші документи:			
☐ міжнародний звіт про пошук			

(72) Винахідник(и) Винахідник(и)-заявник(и) (повне ім'я)	Місце проживання та код держави згідно із стандартом VOIB ST. 3 (для іноземних осіб - тільки код держави)	Підпис(и) винахідника(ів)- заявника(ів)
Білоус Анатолій Григорович	04211, Київ-211, вул. Приозерна 8, кв.64	
В'юнов Олег Іванович	03115, Київ-115, вул. Ф. Пушиної 2, кв. 71	
Плутенко Тетяна Олександрівна	01014, Київ-014, вул. Бастіонна 5А, кв.16	
Федорчук Олександр Петрович	02217, Київ-217, вул. Драйзера 5, кв. 211	
Янчевський Олег Зигмунтович	02130, Київ-130, вул. Воскресенська 12а, кв. 8	

Я (ми) _____ (повне ім'я) _____

прошу (просимо) не згадувати мене (нас) як винахідника(ів) при публікації відомостей стосовно заявки на видачу патенту

Підпис(и) винахідника(ів)

Підпис(и) заявника(ів) _____

Директор ІЗНХ НАН України,
академік НАН України

Пехньо В.І.

Дата підпису

М. П.

Якщо заявником є юридична особа, то підпис особи, що має на це повноваження, із зазначенням посади скріплюється печаткою. Якщо всі винахідники виступають заявниками, то їх підписи наводяться за кодом (72).

Реферат

Корисна модель відноситься до галузі матеріалознавства, до розробки матеріалу з високою діелектричною проникністю на основі лантану, літію, натрію та титану, який включає La_2O_3 , Li_2O , Na_2O і TiO_2 і проявляє високу діелектричну проникність $\epsilon > 10^3\text{--}10^4$ в широкому температурному і частотному діапазонах та має мінімальне значення тангенсу кута діелектричних втрат $\text{tg } \delta_{\text{кГц}} = 0,15\text{--}0,28$.

Автори винаходу: _____

А.Г. Білоус
О.І. В'юнов
Т.О. Плутенко
О.П. Федорчук
О.З. Янчевський

Формула корисної моделі

Матеріал з високою діелектричною проникністю на основі лантану, літію, натрію та титану, що включає La_2O_3 , Li_2O , Na_2O , і TiO_2 , який відрізняється тим, що для підвищення значення діелектричної проникності проводиться часткове заміщення іонів літію іонами натрію у співвідношенні відповідно до формули $\text{La}_{0,5}\text{Li}_{0,5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$ при такому співвідношенні компонентів (мас. %):

La_2O_3	47,57–48,25
Li_2O	3,05–4,42
Na_2O	0,91–2,71
TiO_2	46,65–47,32

Автори винаходу: _____

А.Г. Білоус

О.І. В'юнов

Т.О. Плутенко

О.П. Федорчук

О.З. Янчевський

Матеріал з високою діелектричною проникністю
на основі лантану, літію, натрію та титану

Корисна модель відноситься до галузі матеріалознавства, до розробки літій-вмісних функціональних матеріалів, що проявляють високу діелектричну проникність $\epsilon > 10^3$ – 10^4 в широкому температурному і частотному діапазонах та може бути використана при виготовленні пристроїв в мікроелектроніці, а також для вирішення питань мікромініатюризації електронних схем [1–3].

Літій-вмісні матеріали, які кристалізуються в структурі перовськиту, характеризуються високою іонною провідністю і можуть бути використані при розробці твердотільних акумуляторів. Такі акумулятори характеризуються великою потужністю і можуть працювати в широкому температурному інтервалі. В той же час літій-вмісні матеріали, що характеризуються високою діелектричною проникністю (діелектричною константою) є перспективними через можливість їх використання в мікроелектроніці, для розробки пристроїв для зберігання енергії, в гібридних транспортних засобах [3]. Високе значення діелектричної проникності в даному типі матеріалу обумовлено наявністю релаксації рухомих іонів літію.

Відомим літій-вмісним матеріалом, що проявляє високе значення діелектричної проникності, є твердий розчин на основі титанату барію $(\text{Ba}_{1-x-y}\text{Ca}_x\text{Sn}_y)_m(\text{Ti}_{1-z}\text{Zr}_z)\text{O}_3$, де $0,1 \leq x \leq 0,2$, $0,02 \leq y \leq 0,2$, $0 \leq z \leq 0,05$, $0,99 \leq m \leq 1,015$ до якого додають від 1% до 50 мол.% танталату літію LiTaO_3 [4]. При температурі спікання вище 1275°C в атмосфері повітря такі матеріали мають діелектричну проникність $\epsilon = 1073$ – 1865 і тангенс кута діелектричних втрат $\text{tg } \delta \sim 1$ при кімнатній температурі. Недоліками такого

матеріалу є недостатньо високі значення ϵ та високі значення тангенсу кута діелектричних втрат.

Найбільш близьким по технічній суті та досягнутим результатам до корисної моделі, яка заявляється, є матеріал $\text{Sr}_x\text{Ba}_y\text{Li}_{0,5z}\text{La}_{0,5z}\text{TiO}_3$ ($0,2 \leq x + y \leq 0,98$; $x \geq 0$; $y \geq 0$; та $0,02 \leq z \leq 0,8$), де іони літію та лантану частково заміщують барієм та стронцієм з метою обмеження наскрізного руху іонів літію в матеріалі [5]. Обмежений рух іонів літію дає вклад в поляризацію, що веде до збільшення діелектричної проникності. Такі матеріали характеризуються високим значенням діелектричної проникності $\epsilon = 1220\text{--}20600$ і тангенсом кута діелектричних втрат $\text{tg } \delta = 2,1\text{--}47$ в діапазоні частот $10^3 \leq f \leq 10^6$ Гц. Основними недоліками даного матеріалу є високі значення діелектричних втрат, температурна нестабільність значення діелектричної константи та високі значення температур спікання (вище 1350°C), що призводить до значних втрат легких сполук літію і, як наслідок, зменшується відтворюваність властивостей в зразках однієї партії.

В основу корисної моделі поставлена задача одержати матеріал, що характеризується високим значенням діелектричної проникності $\epsilon > 10^3\text{--}10^4$ в широкому діапазоні частот $0,01 \leq f \leq 10^4$ Гц і відносно невисокими температурами спікання ($\leq 1300^\circ\text{C}$) з метою зменшення втрат летких компонентів під час синтезу.

Поставлена задача досягається використанням як основи для твердого розчину титанату лантану-літію $\text{La}_{0,5}\text{Li}_{0,5}\text{TiO}_3$, в якому частина іонів літію заміщена на іони натрію, що призводить до утворення системи твердих розчинів $\text{La}_{0,5}\text{Li}_{0,5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$. Введення іонів натрію призводить до зменшення рухливості іонів літію, що веде до збільшення діелектричної константи за рахунок зменшення вкладу в іонну провідність і підвищення вкладу в поляризацію. При цьому температура спікання таких матеріалів при $0,15 \leq x \leq 0,25$ не перевищує 1300°C , що не приводить до значних втрат літію.

Завдяки запропонованому складу кераміки на основі системи $\text{La}_{0.5}\text{Li}_{0.5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$ можна одержати нові функціональні матеріали з високою діелектричною проникністю в широкому частотному інтервалі ($\epsilon \geq 10^4$ при $f \leq 1$ Гц; $\epsilon \geq 10^3$ при $f \geq 10^3$ Гц та $\text{tg } \delta_{1\text{кГц}} \sim 0,2$) та відносно невисокими температурами спікання $T_{\text{сп}} \leq 1300$ °С.

Для приготування $\text{La}_{0.5}\text{Li}_{0.5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$ методом твердофазних реакцій використовували La_2O_3 , Li_2CO_3 , Na_2CO_3 та TiO_2 кваліфікації "х.ч.". Порошки у стехіометричному співвідношенні змішували у кульовому млині протягом 4-х годин у присутності етанолу. Суміші порошків висушували і проводили термообробку зразків при температурі 1250 °С протягом 4-х годин. Порошки після термообробки подрібнювали і пресували в таблетки з використанням полівінілового спирту (діаметром 10 мм) при тиску 150 МПа. Спікання проводили в атмосфері повітря при температурі 1300 °С. Поверхню отриманих керамічних таблеток шліфували і на поверхню наносили срібні електроди.

Фазовий склад визначали методом рентгенофазового аналізу (РФА) з використанням ДРОН-4-07 (Cu Ka випромінювання, 40 кВ, 20 мА). Дифрактограми отримували в діапазоні $2\Theta = 10\text{--}150^\circ$ з розміром кроку $\Delta 2\Theta = 0,02^\circ$ та часом зйомки 10 секунд на точку.

Вивчення діелектричних властивостей при кімнатній температурі в широкому діапазоні частот $0,001 \leq f \leq 10^7$ Гц проводили методом комплексного імпедансу. Дані імпедансометричних досліджень отримували за допомогою 1260 Impedance / Gain-phase Analyzer (Solartron Analytical).

У таблиці наведено склади конденсаторних матеріалів та їх електрофізичні властивості. Як видно з таблиці, матеріали системи $\text{La}_{0.5}\text{Li}_{0.5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$ в концентраційному інтервалі ($0,05 \leq x \leq 0,15$), який заявляється, демонструють високі значення діелектричної проникності в широкому частотному діапазоні ($\epsilon = 2700\text{--}6930$ при частотах $f \geq 10^3$ Гц; $\epsilon = 7400\text{--}24300$ при частотах $f = 1$ Гц та $\text{tg } \delta_{1\text{кГц}} = 0,15\text{--}0,28$). Дані матеріали мають відносно невисоку температуру спікання ($T_{\text{сп}} = 1285\text{--}1290$ °С).

В той же час при $x \geq 0,2$ зменшується значення діелектричної проникності при частотах $f \geq 10^3$ Гц, що супроводжується збільшенням температури спікання вище 1300°C . При $x \leq 0,04$ величина діелектричної проникності на високих частотах $f \geq 10^3$ Гц є значно меншою порівняно із заявленим матеріалом. Таким чином, параметри матеріалів на основі $\text{La}_{0,5}\text{Li}_{0,5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$ при $x \geq 0,2$ та $x \leq 0,04$ не відповідають вимогам до термостабільних конденсаторних матеріалів, що характеризуються високим значенням діелектричної проникності в широкому частотному діапазоні.

Таблиця

Електрофізичні властивості конденсаторних матеріалів системи
 $\text{La}_{0,5}\text{Li}_{0,5-x}\text{Na}_x\text{TiO}_3$

№	x	Хімічний склад, % мас.				Електрофізичні властивості			T _{сп} , °C	Примітка
		La ₂ O ₃	Li ₂ O	Na ₂ O	TiO ₂	$\epsilon_{1\text{Гц}}$	$\epsilon_{1\text{кГц}}$	$\text{tg } \delta_{1\text{кГц}}$		
1	0	48.25	4.42	0	47.32	7400	858	0.340	1280	В таблиці виділені рядки, що відповідають заявленому матеріалу
2	0,05	48.02	3.96	0.91	47.09	18500	4000	0.280	1285	
3	0,1	47.79	3.50	1.81	46.87	24300	6930	0.240	1290	
4	0,15	47.57	3.05	2.71	46.65	17300	2700	0.150	1290	
5	0,2	47.35	2.60	3.60	46.43	3390	473	0.140	1300	
6	0,25	47.13	2.16	4.48	46.22	2000	270	0.085	1310	
7	0,3	46.91	1.72	5.35	46.00	333	176	0.050	1310	
8	0,35	46.69	1.28	6.22	45.79	300	132	0.035	1315	
9	0,4	46.48	0.85	7.07	45.58	223	142	0.030	1320	
10	0,45	46.27	0.42	7.92	45.37	120	98	0.012	1320	
11	0,5	46.06	0	8.76	45.17	97	94	0.006	1330	

Список джерел

- [1] Ionic conduction, colossal permittivity and dielectric relaxation behavior of solid electrolyte $\text{Li}_{3x}\text{La}_{2/3-x}\text{TiO}_3$ ceramics / [K. Yu, Y. Tian, R. Gu et al.]. // Journal of the European Ceramic Society. – 2018. – №38. – P. 4483–4487.
- [2] Synthesis and characterization of LAGP-based lithium ion-conductive composites with an Ilto additive / [F. Song, T. Yamamoto, T. Yabutsuka et al.]. // Journal of Alloys and Compounds. – 2021. – №853. – P. 157089.
- [3] A new perovskite-related ceramic with colossal permittivity and low dielectric loss / [Zh. Peng, J. Wang, P. Liang et al.]. // Journal of the European Ceramic Society. – 2020. – №40. – P. 4010–4015.
- [4] Dielectric ceramic material and multilayer ceramic capacitor using the same : pat. US20150009604A1 United States: H01G 4/1227. Application. 08.01.2015; publication. 23.06.2015, Holy Stone Enterprise Co Ltd. 10 p.
- [5] Grain boundary insulated semiconductor ceramic and ceramic capacitor using the same : pat. JP2016113313A Japan: C04B 35/46, H01G 4/12, H01G 4/30. Application. 12.12.2014; publication. 23.06.2016, Energy Storage Materials Co Ltd. 11 p.

Автори винаходу: _____

А.Г. Білоус

О.І. В'юнов

Т.О. Плутенко

О.П. Федорчук

О.З. Янчевський

Директор ІЗНХ ім. В. І. Вернадського

НАН України

академік НАН України _____ В. І. Пехньо

НАЦІОНАЛЬНИЙ ОРГАН ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ
ДЕРЖАВНЕ ПІДПРИЄМСТВО
«УКРАЇНСЬКИЙ ІНСТИТУТ ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ»
(УКРПАТЕНТ)

вул. Глазунова, 1, м. Київ, 01601, тел.: (044) 494-05-05, факс: (044) 494-05-08
E-mail: office@ukrpatent.org, сайт: www.ukrpatent.org, код згідно з ЄДРПОУ 31032378

Розписка про одержання заявки на корисну модель

Вх. №115198 Дата одержання 05.07.2021 12:01:14

Номер заявки **u 2021 03818** *(в подальшому обов'язково посилається на цей номер)*

Заявник ІНСТИТУТ ЗАГАЛЬНОЇ ТА НЕОРГАНІЧНОЇ ХІМІЇ ІМ. В.І. ВЕРНАДСЬКОГО НАН УКРАЇНИ

Назва корисної моделі МАТЕРІАЛ З ВИСОКОЮ ДІЕЛЕКТРИЧНОЮ ПРОНИКНІСТЮ НА ОСНОВІ ЛІТІЮ, НАТРІЮ, ЛАНТАНУ ТА ТИТАНУ

Адреса для листування ІНСТИТУТ ЗАГАЛЬНОЇ ТА НЕОРГАНІЧНОЇ ХІМІЇ ІМ. В.І. ВЕРНАДСЬКОГО НАН УКРАЇНИ, пр. Палладіна, 32/34, м. Київ, 03142

Подані матеріали

21/3У/Вх№20429 Заява про видачу патенту на винахід (КМ)

21/3У/Вх№20431 Формула винаходу (КМ) (арк. - 1, прим. - 3).

21/3У/Вх№20430 Опис винаходу (КМ) (арк. - 5, прим. - 3).

21/3У/Вх№20432 Реферат (арк. - 1, прим. - 3).

21/3У/Вх№20433 Документ, що підтверджує неприбутковість особи (арк. - 1, прим. 1).

УКРАЇНСЬКИЙ ІНСТИТУТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ
(УКРПАТЕНТ)

05 ЛИП 2021



Прийняв(ла) _____ Гуленок С І