

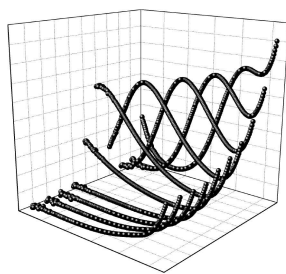
Materiales poliméricos dieléctricos

Jesús G. Puente Córdova,^A M. Edgar Reyes Melo,^{A,B}
Beatriz C. López Walle,^{A,B} Virgilio Á. González González^{A,B}

^A Programa Doctoral en Ingeniería de Materiales. FIME-UANL

^B CIIDIT, FIME-UANL

jesus_ime@hotmail.com



RESUMEN

Los materiales dieléctricos juegan un papel importante en el desarrollo de nuevos dispositivos electrónicos. En este trabajo se presenta el estudio de las propiedades mecánicas (módulo elástico complejo: $E^*=E'+iE''$) y dieléctricas (permitividad relativa compleja: $\epsilon_r^*=\epsilon_r'-i\epsilon_r''$) de un copolímero, el polivinil butiral (PVB), con la finalidad de evaluar la capacidad bifuncional de este material. Reometría tradicional, análisis mecánico dinámico (DMA) y análisis dieléctrico dinámico (DDA) son las técnicas instrumentales para evaluar las propiedades del PVB. A partir de los datos experimentales se desarrolló un modelo empírico que establece una relación entre las propiedades mecánicas y dieléctricas (E' vs. ϵ_r') del PVB; el incremento de ϵ_r' produce un decaimiento exponencial de E' .

PALABRAS CLAVE

Polivinil butiral, dieléctrico, polímero, viscoelasticidad

ABSTRACT

Dielectric materials play an interesting role in the development of new electronic devices. In this work, the study of mechanical (complex elastic modulus: $E^*=E'+iE''$) and dielectric properties (complex relative permittivity: $\epsilon_r^*=\epsilon_r'-i\epsilon_r''$) of a copolymer, the polyvinyl butyral (PVB) are showed. The bifunctional capacity evaluation of this material is performed by traditional rheometry, dynamic mechanical analysis (DMA) and dynamic dielectric analysis (DDA). From the experimental data, an empirical model was developed, it establishes a relationship between the mechanical and dielectric properties (E' vs. ϵ_r') of the PVB; the increasing of ϵ_r' produces an exponential decay in the value of E' .

KEYWORDS

Polyvinyl butyral, dielectric, polymer, viscoelasticity

INTRODUCCIÓN

Un material dieléctrico es aquel en el que la estructura electrónica de sus átomos constituyentes es tal que, a una escala mayor al tamaño del átomo, todo el conjunto de átomos pueden posicionarse de una manera particular en el espacio, definiéndose una estructura atómica o molecular a la cual se encuentran ligados los electrones de valencia, de tal forma que dichas partículas subatómicas no pueden

desplazarse libremente bajo la acción de un campo eléctrico externo. Si la estructura atómica y por ende la estructura electrónica de un material dieléctrico no cambian en el tiempo, entonces están en equilibrio con el medio, y cuando dicho material es sometido a la acción de un campo eléctrico externo, sus estructuras (atómica y electrónica) tienden a modificarse para buscar nuevamente el equilibrio, esto a través de un fenómeno de polarización eléctrica y/u orientación de dipolos eléctricos.

Es importante mencionar que cuando el campo eléctrico aplicado es eliminado, el material tiene una fuerte tendencia a restablecer sus características estructurales originales. Aquellos materiales que pueden llegar a restablecer por completo su estructura cuando se elimina el campo eléctrico aplicado, podrán repetir el fenómeno un número infinito de veces, y se identifican como materiales dieléctricos ideales. Por supuesto estos materiales no existen en la naturaleza; sin embargo habrá algunos que tengan un comportamiento cercano al ideal, a estos materiales se les denomina “materiales dieléctricos”, siendo su principal aplicación el almacenamiento de energía eléctrica.

En los materiales dieléctricos es poco probable encontrar electrones libres, lo que trae como consecuencia que estos materiales también sean buenos aislantes eléctricos, pudiendo llegar a tener una resistividad de 10^8 a 10^{16} Ωm . De lo anterior se establece que los materiales dieléctricos son buenos aislantes eléctricos, sin embargo un buen aislante eléctrico no necesariamente tiene buenas propiedades dieléctricas.

La eficiencia con la que un material aislante eléctrico puede llevar a cabo la función de dieléctrico se manifiesta a través de su permitividad dieléctrica (ϵ). Para un material isotrópico, esta propiedad ϵ , es “una constante” de proporcionalidad que relaciona a un campo eléctrico aplicado a dicho material (H) con el campo eléctrico resultante (B) al interior del mismo, ecuación (1).

Para este caso en particular, debido a que los vectores son \vec{H} y \vec{B} paralelos, la ϵ se considera un escalar. Sin embargo, para el caso de materiales no isotrópicos ϵ debe considerarse como un tensor de segundo orden, ya que relaciona a dos campos eléctricos que matemáticamente son tensores de primer orden.

$$\left| \vec{B} \right| = \epsilon \left| \vec{H} \right| \quad (1)$$

La permitividad de un material se reporta normalmente en relación con la permitividad del vacío, $\epsilon_0 = 8.8541878176 \times 10^{-12}$ F/m, denominándose permitividad relativa, ϵ_r . En este sentido, a manera de ejemplo, se han reportado para materiales poliméricos valores de ϵ_r para el poliestireno de 2.4 a 3.1, para el polifluoruro de vinilo 8.0, y para el PET 3.0. Es importante mencionar que en los polímeros, la magnitud de ϵ_r está asociada principalmente al número de “dipolos eléctricos permanentes” que conforman su estructura macromolecular. Estos dipolos eléctricos son el resultado de una distribución asimétrica de los electrones en los grupos químicos de las cadenas poliméricas.

Cuando se aplica un campo eléctrico externo, los dipolos se orientan elásticamente para neutralizar la acción del campo eléctrico; el número y el tipo de dipolos orientados definen la magnitud de ϵ_r . La estructura electrónica en los grupos químicos que forman parte de los polímeros también puede modificarse bajo la acción del campo eléctrico externo, induciéndose la formación de nuevos dipolos eléctricos (dipolos eléctricos no permanentes) que, al orientarse, también contribuirán a la magnitud de ϵ_r . La facilidad con que se puede inducir la formación de nuevos dipolos en un material polimérico se conoce como polarizabilidad, α .

Entre los materiales más comunes que se utilizan como dieléctricos se encuentra el material cerámico titanato de bario o BaTiO_3 , cuya permitividad relativa puede alcanzar valores de hasta 6900.¹ En general, los materiales cerámicos son mejores dieléctricos que los materiales poliméricos, sin embargo presentan desventajas tales como, su alta fragilidad y elevadas temperaturas de proceso o transformación, lo que limita sus aplicaciones en dispositivos electrónicos modernos y mecatrónicos, los cuales deben tener cierta flexibilidad mecánica o capacidad de amortiguamiento de vibraciones mecánicas.^{2,3} Algunos materiales poliméricos han sido utilizados como dieléctricos,⁴⁻⁷ con el inconveniente de que la comprensión de la relación propiedades dieléctricas-morfología tiene aún muchas interrogantes, entre otras razones debido a

que los polímeros son materiales que se encuentran alejados del equilibrio termodinámico.

En este trabajo se presenta la evaluación de las propiedades mecánicas y dieléctricas de un material polimérico cuya estructura es de tipo copolímero, el polivinil butiral o PVB, de tal manera que el comportamiento viscoelástico del PVB es analizado no solamente a partir de su manifestación mecánica, sino también a partir de su manifestación dieléctrica. Estos resultados permitirán establecer la capacidad bi-funcional (mecánica y dieléctrica) del PVB.

EL POLIVINIL BUTIRAL

El polivinil butiral o PVB es un copolímero (desarrollado en 1928 por Canada Shawinigan Chemicals) utilizado principalmente en el proceso de fabricación de “vidrio laminado” para la industria automotriz.^{8,9} El PVB se obtiene al modificar el poli-alcohol vinílico al hacerlo reaccionar por condensación con butiraldehído en medio ácido. El resultado de este proceso de modificación produce cadenas poliméricas cuya estructura está formada por tres tipos de unidades estructurales a lo largo de las cadenas de PVB, (ver figura 1), razón por la cual se considera al PVB como un copolímero.^{10,11} Las condiciones de síntesis del PVB determinan el contenido y distribución de las tres unidades estructurales, pudiendo tener variaciones en la composición de 65% mol para las unidades estructurales del butiral, 34% mol las del alcohol y 3% mol para el acetato.

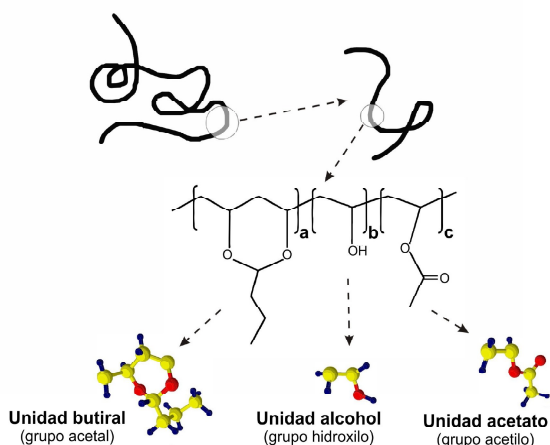


Fig.1. Representación esquemática de la estructura química del copolímero PVB.

Debido a su estructura molecular a base de enlaces covalentes, el PVB es un aislante eléctrico. En la figura 1, se identifican los grupos químicos que conforman la estructura química del PVB: acetales, hidroxilos y acetilos. Estos grupos químicos debido a la distribución asimétrica de sus electrones se pueden considerar como dipolos eléctricos, que bajo la acción de un campo eléctrico externo pueden orientarse de una manera tal que contribuyen a la magnitud de ϵ_r . Se ha demostrado que mediante un proceso de dopaje con yodo, I_2 , se puede incrementar la conductividad eléctrica del PVB, resultado de la disminución tanto de la energía de activación de la conducción como de la capacidad de almacenamiento de carga eléctrica.¹² También se ha reportado que un dopaje del PVB con la sal cloruro de níquel ($NiCl_2$) permite incrementar el valor de su permitividad relativa.¹³ La relación entre las propiedades dieléctricas y mecánicas es un tema que presenta aún muchas interrogantes.

PRINCIPIO FÍSICO DE LOS ANÁLISIS DINÁMICOS: MECÁNICO Y DIELECTRICO

La naturaleza viscoelástica de los polímeros se puede interpretar como un comportamiento intermedio entre un líquido viscoso puro y un sólido elástico ideal. En consecuencia el estudio de la reología o viscoelasticidad de los polímeros requiere de técnicas dinámicas u oscilatorias que permitan deconvolucionar la parte elástica y viscosa de estos materiales. En base a lo anterior se utilizan en este trabajo dos técnicas experimentales de base, el análisis mecánico dinámico y el análisis dieléctrico dinámico.

El principio físico del análisis mecánico dinámico o DMA por sus siglas en inglés, se fundamenta en someter una película o probeta a un estímulo mecánico periódico en forma sinusoidal, bajo condiciones isócronas o isotérmicas. Debido al carácter viscoelástico del polímero estudiado, el estímulo aplicado y la respuesta obtenida se encuentran en un ángulo δ_m de desfase, lo que permite deconvolucionar la respuesta en dos partes, una que está en fase y otra desfasada $\pi/2$ radianes del estímulo aplicado. Esto permite el cálculo de dos módulos, que pueden representarse en un número complejo, $E^* = E' + iE''$. La parte real de este número está asociada al comportamiento elástico del polímero,

en tanto la parte imaginaria se relaciona con la parte viscosa del mismo. El cociente de la componente imaginaria y real del módulo elástico complejo se le conoce como $\tan \delta_m$ o factor de pérdida.

Por otra parte, si en lugar de aplicar un estímulo mecánico a la probeta, se aplica un estímulo eléctrico (campo eléctrico) de manera periódica siguiendo una forma sinusoidal, la respuesta obtenida será una corriente eléctrica que estará en desfase un ángulo δ_e con respecto al estímulo aplicado. Por lo tanto, de manera análoga al cálculo del módulo elástico complejo, en este caso en particular se puede calcular la permitividad dieléctrica relativa compleja, $\epsilon_r^* = \epsilon_r' - i\epsilon_r''$, en donde la parte real está asociada al almacenamiento “elástico” de cargas eléctricas, y la parte imaginaria se relaciona con la disipación de estas cargas en forma de corriente eléctrica. Esta técnica es conocida como análisis dieléctrico dinámico o DDA por sus siglas en inglés.

DESARROLLO EXPERIMENTAL

En esta sección se describen las pruebas experimentales que fueron utilizadas en este trabajo de investigación y que tienen por objetivo correlacionar las manifestaciones mecánica y dieléctrica de la viscoelasticidad del PVB.

Películas delgadas de PVB

Para una buena caracterización dieléctrica y mecánica, la geometría es un aspecto fundamental, requiriéndose que las probetas sean en forma de películas delgadas (espesor alrededor de 100 μm), siendo el área y principalmente el espesor, los aspectos geométricos más importantes. Por lo anterior, es necesario determinar el comportamiento reológico del PVB en disolución con la finalidad de definir la concentración más adecuada para preparar las películas por vaciado o “casting”.

Se utilizó un reómetro Anton Paar con geometría de platos paralelos a 25°C para determinar la viscosidad dinámica η de cuatro disoluciones de PVB en tetrahidrofurano (THF); para asegurar la homogeneidad de las disoluciones se dejaban estas bajo agitación magnética (700 RPM), a 40°C durante 30 min. Las concentraciones de cada una fueron: 5, 10, 15 y 20% wt de PVB. A partir de la disolución



en THF con la concentración seleccionada (10% wt), cuya determinación se discutirá en la siguiente sección, se prepararon películas por “casting”, separando el disolvente por convección natural a temperatura ambiente durante 24 horas.

Una vez obtenidas las películas delgadas de PVB, estas fueron caracterizadas mediante la aplicación de estímulos mecánicos y eléctricos de tipo oscilatorio en un amplio intervalo de frecuencias y temperaturas. Para el estudio mecánico oscilatorio se utilizó la técnica DMA. Por otra parte, la aplicación de estímulos eléctricos oscilatorios, se llevó a cabo utilizando DDA.

Análisis mecánico dinámico

Las películas obtenidas fueron estudiadas mediante DMA, utilizando un DMA 8000 de Perkin Elmer midiendo el módulo elástico complejo ($E^* = E' + iE''$). Las mediciones se llevaron a cabo en modo tensión bajo condiciones isócronas a una frecuencia de 1 Hz, aplicando una amplitud de deformación de 10 μm y en un intervalo de temperaturas (T) de 25-105°C.

Análisis dieléctrico dinámico

Las mediciones de DDA se llevaron a cabo en un rango de frecuencias de 20 Hz- 2 MHz, utilizando un electrómetro Agilent E4980A. El voltaje aplicado que define al campo eléctrico utilizado como estímulo osciló entre -1 y 1 V, todo esto a diferentes temperaturas, desde 25°C hasta 115°C en intervalos de 10°C. En la figura 2 se muestra el esquema de instrumentación utilizado, donde el electrómetro evalúa la capacitancia de la muestra, C' y el factor

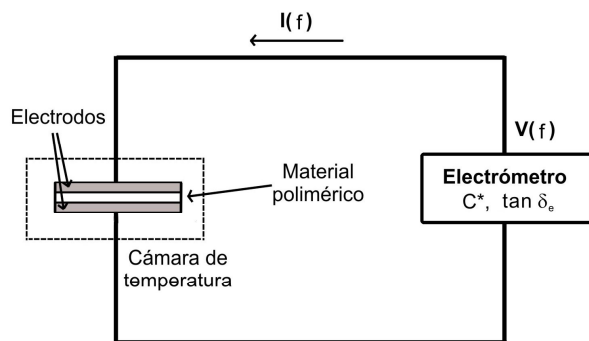


Fig. 2. Esquema de la instrumentación DDA de películas delgadas.

de pérdida, $\tan \delta_e$, siendo posible a partir de estos valores calcular la parte real y la parte imaginaria de la permitividad relativa compleja, ϵ_r^* , de acuerdo con las siguientes ecuaciones:

$$\epsilon_r' = \frac{\epsilon'}{\epsilon_0} = \frac{C'}{C_0} \quad \text{donde } C_0 = \epsilon_0 \frac{A}{d} \quad (2)$$

$$\tan \delta_e = \frac{\epsilon_r''}{\epsilon_r'} \quad (3)$$

siendo ϵ_0 la permitividad del vacío, A el área de los electrodos (ver figura 2) y d el espesor de la muestra.

La ecuación (3) define a la $\tan \delta_e$ como el cociente de la componente imaginaria y real de la permitividad relativa compleja. A este parámetro también se le conoce como factor de pérdida, y es análogo a la $\tan \delta_m$ calculada a partir del módulo elástico complejo.

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En esta sección se presentan los resultados obtenidos a partir del DMA y DDA. Posteriormente, dentro de esta misma sección, se comparan las manifestaciones mecánica y dieléctrica de la viscoelasticidad del PVB.

Películas delgadas de PVB

En la figura 3 se observa que en todos los casos (5, 10, 15 y 20% wt) a bajas tasas de deformación (entre 10^{-3} y 10^{-1} s^{-1}) la viscosidad permanece casi constante (comportamiento de fluido newtoniano), en tanto a tasas de deformación mayores a 10^{-1} s^{-1} la viscosidad disminuye considerablemente, lo que corresponde a un comportamiento de tipo pseudoplástico. A medida que la concentración de solvente aumenta, existe una

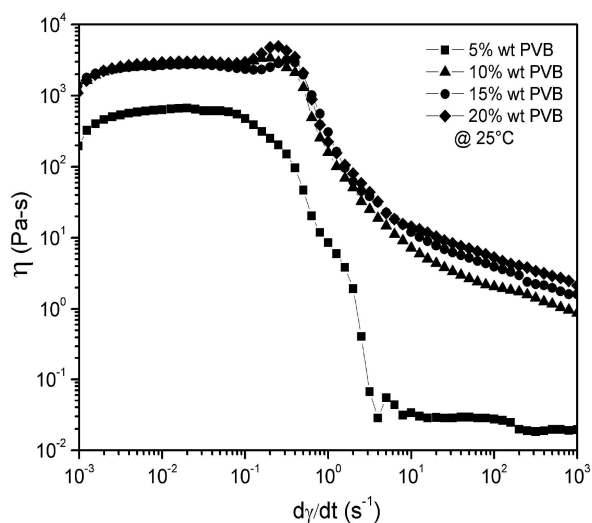


Fig. 3. Reograma de PVB-disolvente en función de la rapidez de deformación.

disminución global en las curvas, tanto en la región Newtoniana, como en la pseudoplástica.

La facilidad para manipular al PVB se incrementa a medida que aumenta la concentración de solvente, aunque con esto disminuya evidentemente la cantidad de PVB. De acuerdo con la figura 3 el comportamiento reológico de las formulaciones 10, 15 y 20% wt de PVB, no presentan diferencias significativas. En cambio la formulación con menor cantidad de PVB (5% wt) presenta una disminución considerable de la viscosidad. Por esta razón se seleccionó la formulación con 10% wt de PVB, pudiéndose también haber utilizado las formulaciones con 15 o 20% wt de PVB.

Análisis mecánico dinámico

La figura 4 muestra la parte real de E^* , la cual está asociada a la parte elástica del PVB. En esta figura se identifica una disminución de E' conforme aumenta la temperatura, en un intervalo desde 25 hasta 105°C , donde es posible distinguir tres zonas diferentes. En la primera zona ($25-50^\circ\text{C}$) hay un decremento poco pronunciado de E' ($dE'/dT \sim 0$) asociado a movimientos moleculares localizados de los grupos químicos más pequeños del PVB. En la segunda zona definida por un intervalo de temperaturas de 50 a 85°C , se presenta un decremento pronunciado de E' a medida que aumenta la temperatura. Esto está asociado a la manifestación mecánica de la transición vítrea y corresponde a un aumento importante de

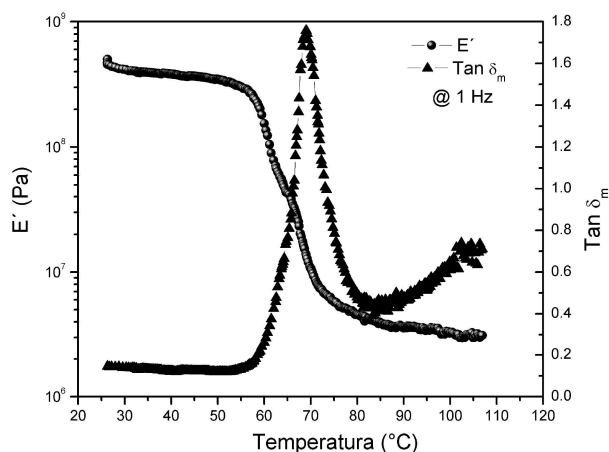


Fig. 4. Parte real del E^* y $\tan \delta_m$ del PVB, en función de la temperatura (a 1 Hz).

grados de libertad de los movimientos moleculares de las cadenas del PVB. Finalmente, en la tercera zona, a altas temperaturas ($T > 85^\circ\text{C}$), E' sigue disminuyendo conforme aumenta la temperatura, de una manera tal que E' podría considerarse “constante”. Este comportamiento está asociado a la elasticidad de tipo “cauchótica” del PVB, la cual es función del número de entrecruzamientos físicos entre las cadenas de PVB.

Por otra parte, en $\tan \delta_m$ vs. T , se identifican tres zonas análogas a las tres zonas de E' en los mismos intervalos de temperatura. En la primera zona, de 25 a 50°C , $\tan \delta_m$ permanece casi constante, con una magnitud de ≈ 0.13 . Este bajo valor de $\tan \delta_m$ indica que en este intervalo de temperatura la parte viscosa es menos importante que la elástica, lo cual concuerda con los elevados valores de $E' \sim 3.9 \times 10^8$ Pa, en el mismo intervalo de temperatura. Posteriormente en el intervalo de 50 a 69°C , $\tan \delta_m$ aumenta considerablemente hasta un valor máximo de 1.75, y de 69 a 85°C $\tan \delta_m$ disminuye también de manera muy pronunciada hasta un valor de 0.44. El máximo de $\tan \delta_m$ a 69°C es un indicador de la manifestación mecánica de la temperatura de transición vítrea (T_g) del PVB, y está relacionado con el pronunciado decremento de E' en el mismo intervalo de temperatura. Finalmente, a temperaturas superiores a 85°C $\tan \delta_m$ tiene nuevamente un incremento, el cual está relacionado con el comportamiento identificado como “cauchótico” en E' ; pero a medida que aumenta la temperatura en esta región, $\tan \delta_m$ muestra que la viscosidad se hace cada vez

más importante que la elasticidad cauchótica. Este comportamiento se puede interpretar como una tendencia al flujo por parte del polímero cuando la temperatura se incrementa.

Análisis dieléctrico dinámico

Los resultados obtenidos a partir del análisis dieléctrico dinámico se resumen en las figuras 5 a 7.

La figura 5 muestra para varias temperaturas la variación de la parte real de ϵ_r^* en un intervalo de frecuencias de 20 Hz- 2 MHz. A una temperatura de 115°C , a bajas frecuencias (20 Hz a 4 KHz), ϵ_r' permanece casi constante con una magnitud promedio de 3.15. Posteriormente en un intervalo de frecuencias de 4 KHz a 1 MHz, ϵ_r' disminuye considerablemente hasta un valor de 2.71. A frecuencias mayores a 1 MHz, ϵ_r' tiene un aumento importante, el cual está asociado a corrientes eléctricas parásitas en la interfase del electrodo y la película de PVB. Por otra parte, los resultados obtenidos de las mediciones experimentales de ϵ_r' a temperaturas inferiores a 115°C , muestran que la curva de ϵ_r' se desplaza hacia las bajas frecuencias. Este comportamiento indica que los movimientos de los dipolos eléctricos asociados al decremento de ϵ_r' cuando la frecuencia aumenta, son procesos térmicamente activados.

Los movimientos térmicamente activados de los dipolos eléctricos que definen a las curvas ϵ_r' de la figura 5 se manifiestan de una manera análoga en las curvas $\tan \delta_c$ (ver figura 6) en función de la

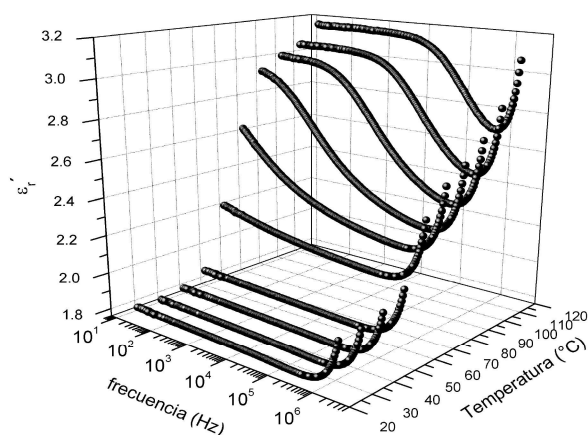


Fig. 5. Parte real de la ϵ_r^* del PVB, en función de la frecuencia y la temperatura.

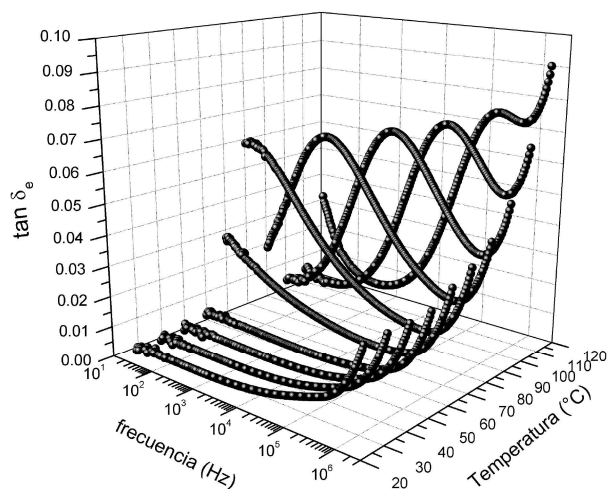


Fig. 6. $\tan \delta_e$ del PVB, en función de la frecuencia y la temperatura.

frecuencia, en las cuales se identifica de manera clara un máximo o pico, que se desplaza hacia las bajas frecuencias a medida que la temperatura disminuye.

Con la finalidad de poder comparar la manifestación mecánica y la manifestación dieléctrica del comportamiento viscoelástico del PVB, a partir de las figuras 5 y 6 se construyeron curvas isócronas de ϵ_r' y $\tan \delta_e$ a la frecuencia más baja que permitió medir el equipo (20 Hz). Estas curvas experimentales se muestran en la figura 7, las cuales al igual que las curvas experimentales isócronas de E' y $\tan \delta_m$ de la figura 4, presentan tres zonas diferentes pero en intervalos de temperatura ligeramente desfasados. Esto último, se debe a que los resultados de la figura 4 representan aspectos mecánicos y en la figura 7 las

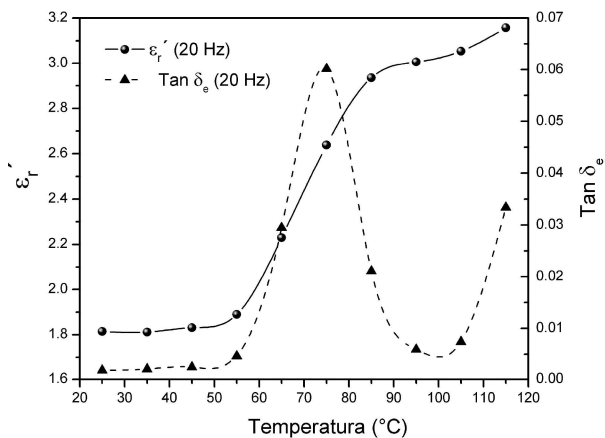


Fig. 7. Parte real de la ϵ_r^* y $\tan \delta_e$ del PVB, en función de la temperatura.

curvas representan aspectos eléctricos del mismo fenómeno (comportamiento viscoelástico o reológico del PVB). Como consecuencia de lo anterior la temperatura de transición vítrea, que corresponde al máximo de $\tan \delta_e$ en la figura 7, es de 75°C.

Comparación entre DMA y DDA

En la figura 8 se muestra la comparación de la parte real del E^* y la parte real de la ϵ_r^* del PVB, en función de la temperatura. Aquí se aprecia que es posible identificar una relación entre las manifestaciones mecánica y dieléctrica de la viscoelasticidad de dicho material. A bajas temperaturas el valor de E' se mantiene uniforme mientras que ϵ_r' posee un valor muy bajo, casi constante. Por otro lado, a altas temperaturas, pasando la región de la transición vítrea del PVB, se observa el efecto contrario; el valor de E' disminuye mientras que el valor de ϵ_r' aumenta.

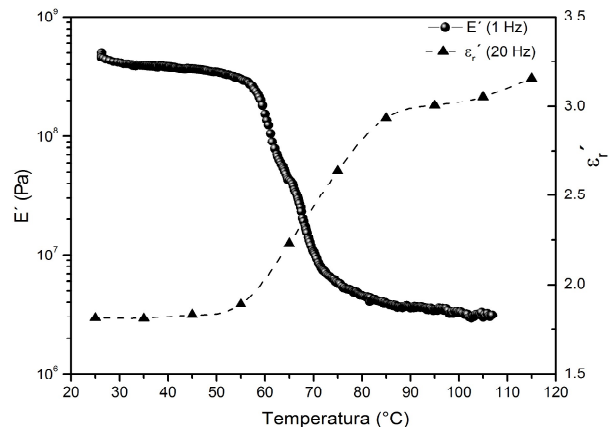


Fig. 8. Comparación de E' y ϵ_r' en función de la temperatura.

El gráfico 9 muestra la comparación de $\tan \delta_m$ obtenida por DMA y la $\tan \delta_e$ obtenida mediante DDA (estímulo mecánico vs. estímulo eléctrico), en función de la temperatura. En esta figura se identifica de manera más clara que la Tg calculada a partir del DMA es de 69°C, mientras que la Tg estimada a partir del DDA es de 75°C. La diferencia entre estos valores se debe, entre otros aspectos, a que en el DMA el estímulo mecánico induce movimientos en todos los grupos químicos que constituyen las macromoléculas del PVB, mientras que en el DDA el estímulo eléctrico actúa de manera selectiva sobre los grupos químicos que presentan momento dipolar eléctrico.

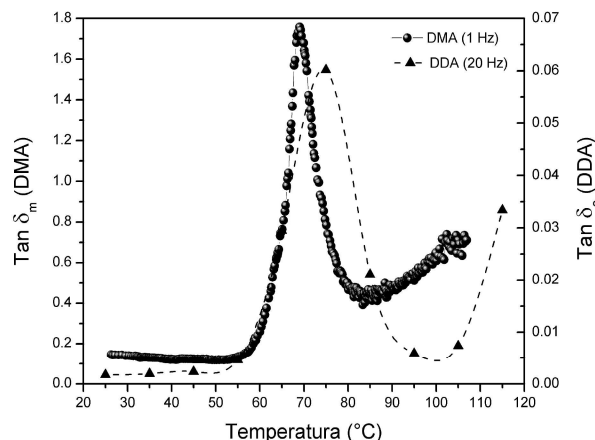


Fig. 9. Comparación de $\tan \delta_m$ (DMA) y $\tan \delta_e$ (DDA), en función de la temperatura.

A partir de los datos experimentales de la figura 8 se construyó el gráfico de la figura 10, en la que se muestra de manera clara, como el incremento de ϵ_r' corresponde a un decaimiento exponencial de E' .

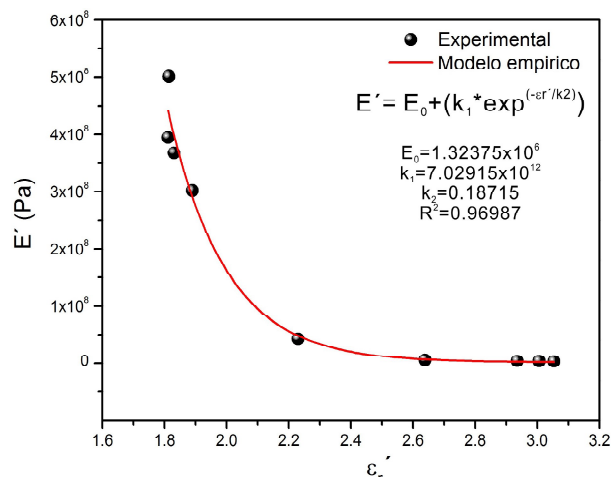


Fig. 10. Modelo empírico de la relación entre E' vs. ϵ_r' para el PVB.

CONCLUSIONES

La evaluación de las propiedades dieléctricas ($\tan \delta_e$) mediante DDA permite estimar la temperatura de transición vítrea del PVB, la cual es comparable con la estimada a partir de las mediciones experimentales de DMA.

Es posible determinar una relación entre las propiedades mecánicas y dieléctricas del copolímero PVB. El incremento de las propiedades dieléctricas del PVB induce un decaimiento exponencial de sus propiedades mecánicas.

REFERENCIAS

1. Vijatović M. M., Bobić J. D., Stojanović B. D.; “History and Challenges of Barium Titanate: Part II”, *Science of Sintering*, 40, 2008, pp. 235-244.
2. Chung D. D. L., “Review: Materials for vibration damping”, *Journal of Materials Science*, 36, 2001, pp. 5733-5737.
3. Asare T. A., Poquette B. D., Schultz J. P., Kampe S. L.; “Investigating the vibration damping behavior of barium titanate (BaTiO_3) ceramics for use as a high damping reinforcement in metal matrix composites”, *Journal of Materials Science*, 2012, Vol. 47, Issue 6, pp. 2573-2582.
4. Barber P., Balasubramanian S., Anguchamy Y., Gong S., Wibowo A., Gao H., Ploehn H.J., zur Loye H.-C.; “Polymer Composite and Nanocomposite Dielectric Materials for Pulse Power Energy Storage”, *Materials*, 2009, 2, pp. 1697-1733.
5. Mallikarjuna N. N., Manohar S. K., Kulkarni P. V., Venkataraman A., Aminabhavi T. M.; “Novel High Dielectric Constant Nanocomposites of Polyaniline Dispersed with $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ Nanoparticles”, *J Appl Polym Sci*, 2005, Vol. 97, pp. 1868-1874.
6. Rutenberg I. M., Scherman O. A., Grubbs R. H., Jiang W., Garfunkel E., Bao Z.; “Synthesis of Polymer Dielectric Layers for Organic Thin Film Transistors via Surface-Initiated Ring-Opening Metathesis Polymerization”, *J. Am. Chem. Soc.*, 2004, 126, pp. 4062-4063.
7. Mistral C.J., Basrouer S., Chaillout J.-J.; “Dielectric polymer: scavenging energy from human motion”, *Proc. of SPIE Electroactive Polymer Actuators and Devices*, 2008, Vol. 6927, 692716.
8. Lim K.Y.; Kim D.H., Paik U., Kim S.H.; “Effect of the molecular weight of poly (ethylene glycol) on the plasticization of green sheets composed of ultrafine BaTiO_3 particles and poly(vinyl butyral)”, *Materials Research Bulletin* 38, 2003, pp. 1021-1032.
9. Posavec D., Dorsch A., Bogner U., Bernhardt G., Nagl S.; “Polyvinyl butyral nanobeads: preparation, characterization, biocompatibility

- and cancer cell uptake”, *Microchim Acta*, 2011, 173, pp. 391–399.
10. Voskanyan P. S.; “Glue Compositions Based on Polyvinyl Acetate and Its Derivatives”, *Polymer Science, Series D. Glues and Sealing Materials*, 2009, Vol. 2, No. 2, pp. 92–96.
 11. Etienne S., Becker C., Ruch D., Germain A., Calberg C.; “Synergetic effect of poly(vinyl butyral) and calcium carbonate on thermal stability of poly(vinyl chloride) nanocomposites investigated by TG–FTIR–MS”, *J Therm Anal Calorim*, 2010, 100, pp. 667–677.
 12. Chand S., Kumar N.; “Effect of iodine on electrical conduction in PVB films”, *Journal of Materials Science Letters* 8, 1989, pp. 1009-1010.
 13. El-Sherbiny M.A., El-Rehim N. S. A.; “Spectroscopy and dielectric behavior of pure and nickel-doped polyvinyl butyral films”, *Polymer Testing* 20, 2001, pp. 371-378.

