

فرآیندهای نوین در مهندسی مواد

ma.iaumajlesi.ac.ir

بهینه‌سازی خواص مکانیکی و دی‌الکتریک به‌وسیله کنترل تراکم‌پذیری و ریزساختار در سرامیک‌های نیتريد سيليسيم تهیه شده به روش پرس داغ

مقاله پژوهشی

سید سلمان سید افقهی^{۱*}، امیرحسین کوچکی فروشانی^۲، پوریا دهقانی^۳، فرهود حیدری^۴

۱- دانشیار، دانشکده و پژوهشکده فنی و مهندسی، دانشگاه جامع امام حسین (ع)، تهران، ایران.

۲- دانشجوی دکتری، رشته مهندسی مواد، پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، البرز، ایران.

۳- دانشجوی دکتری، رشته مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی دانشگاه جامع امام حسین (ع)، تهران، ایران.

۴- پژوهشگر، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه جامع امام حسین (ع)، تهران، ایران.

*salmanafghahi@gmail.com

چکیده

سرامیک‌های نیتريد سيليسيم موادی با خواص مکانیکی، دی‌الکتریک و حرارتی عالی هستند که با دارا بودن چنین ویژگی‌هایی یکی از کاندیدهای اصلی جهت کاربرد در شرایط محیطی دما بالا است. در این پژوهش اثر دمای تف‌جوشی بر کنترل ریزساختار و تراکم‌پذیری و بهینه‌سازی خواص مکانیکی و دی‌الکتریک سرامیک‌های نیتريد سيليسيم تهیه شده به روش پرس داغ در دماهای مختلف 1500°C ، 1600°C ، 1700°C و 1800°C بررسی شده است. از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی و پراش اشعه ایکس به ترتیب جهت بررسی ریزساختار و آنالیز فازهای تشکیل شده استفاده شده است. طبق الگوی پراش حاصل از پرتوایکس و رابطه گازارامسیر، در نمونه‌های سینتر شده در دمای 1600°C و 1700°C همه فاز آلفا به بتا تبدیل شده و در نمونه سینتر شده در دمای 1500°C ، میزان تبدیل $95/45\%$ بوده است. نتایج حاکی از آن است که افزایش دمای تف‌جوشی از 1500°C به 1800°C منجر به درشت‌تر شدن دانه‌های میله‌ای شکل و دستیابی به ریزساختار دوگانه شده و قطر متوسط دانه‌ها از $0/7\ \mu\text{m}$ به $1/34\ \mu\text{m}$ افزایش یافته است. نمونه سینتر شده در دمای 1500°C ، با دارا بودن کمترین مقدار قطر متوسط ($0/7\ \mu\text{m}$) در بین سایر نمونه‌ها، بیشترین مقدار استحکام خمشی $9/5 \pm 550\ \text{MPa}$ را به خود اختصاص داده است. با افزایش اندازه متوسط دانه‌ها و کاهش نسبت فازی β/α در اثر افزایش دمای تف‌جوشی، میانگین ثابت دی‌الکتریک و تانژانت اتلاف نمونه‌ها به ترتیب از $4/5$ به $9/2$ و از $0/99$ به $0/22$ افزایش یافته است.

اطلاعات مقاله

دریافت: ۱۴۰۱/۰۶/۱۸

پذیرش: ۱۴۰۱/۱۱/۲۹

کلید واژگان:

پرس داغ

تف‌جوشی

خواص مکانیکی

دی‌الکتریک

نیتريد سيليسيم

Optimization of Mechanical and Dielectric Properties by Controlling Densification and Microstructure in Silicon Nitride Ceramics Prepared by Hot Pressing Method

Seyed Salman Seyed Afghahi^{1*}, Amirhossein Kouchaki Foroshani², Pouria Dehghani³, Farhood Heydari⁴

۱- Associate Professor, Faculty of Engineering, Imam Hossein University, Tehran, Iran.

۲- Ph.D. student, Department of Ceramic, Materials and Energy Research Center, Karaj, Alborz, Iran.

۳- Researcher, Faculty of Engineering, Imam Hossein University, Tehran, Iran.

۴- Ph.D. student, Researcher at Advanced Materials and Nanotechnology Research Center, Imam Hossein University, Tehran, Iran.

*salmanafghahi@gmail.com

Article Information

Original Research Paper

Dor:

۲۰.۱۰۰۱.۱.۲۴۲۳۳۲۲۶.۱۴۰۲.۱۷.۳.۲.۰

Abstract

Silicon nitride ceramics are materials with excellent mechanical, dielectric and thermal properties, which with such properties is one of the main candidates for use in high temperature environments. In this study, the effect of sintering temperature on microstructure control and densification and optimization of mechanical and dielectric properties of silicon nitride ceramics prepared by hot pressing at different temperatures of 1500°C ,

برای ارجاع به این مقاله از عبارت ذیل استفاده نمایید:

Please cite this article using:

Seyed Salman Seyed Afghahi, Amirhossein Kouchaki Foroshani, Pouria Dehghani, Farhood Heydari, Optimization of Mechanical and Dielectric Properties by Controlling Densification and Microstructure in Silicon Nitride Ceramics Prepared by Hot Pressing Method, New Process in Material Engineering, ۲۰۲۳, ۱۷(۳), ۱۳-۲۳.

Keywords:

Hot Press

Sintering

Mechanical Properties

Dielectric

Silicon Nitrid

۱- مقدمه

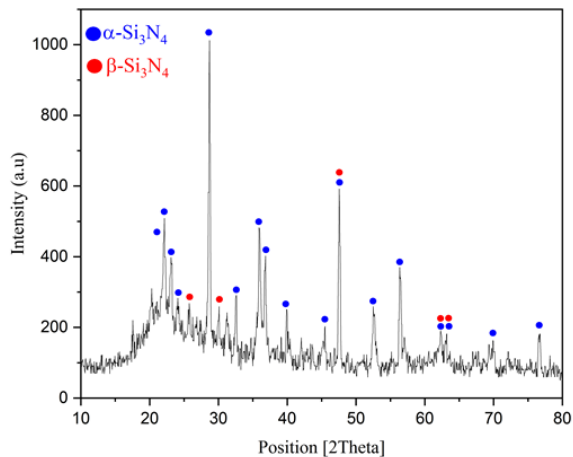
در طی سال‌های اخیر، نسل‌های جدیدی از سرامیک‌ها توسعه یافته است و انتظار می‌رود با توجه به روند رو به رشد آنها، استفاده‌های وسیعی در حوزه کاربردهای ساختاری دما بالا پیدا کنند. نیتريد سيليسيم يک ماده‌ی سازه‌ای شناخته شده با خواص منحصربه‌فرد مانند استحکام بالا، چقرمگی شکست بالا و مقاومت در برابر اکسیداسیون مناسب، یکی از کاندیدهای اصلی جهت کاربرد در شرایط محیطی دما بالا با حفظ خواص مکانیکی و فیزیکی خود است [۱-۳]. با این حال، تف‌جوشی سرامیک‌های نیتريد سيليسيم به دلیل پیوندهای کووالانت قوی و سرعت آهسته نفوذ ماده مشکل است، بنابراین استفاده از افزودنی‌های تف‌جوشی مانند MgO ، Yb_2O_3 ، CaO ، Li_2O ، Al_2O_3 ، Y_2O_3 به منظور تسریع چگالش سرامیک‌های نیتريد سيليسيم ضروری هستند [۴-۷].

در طول دهه‌های گذشته، از چندین روش تف‌جوشی به همراه فشار جهت دستیابی به سرامیک‌های نیتريد سيليسيم با خواص بهینه استفاده شده است. حوزه فناوریانه تحقیقاتی در این سرامیک‌ها عمدتاً بر پایه: (۱) ساخت سرامیک‌های نیتريد سيليسيم متراکم به همراه فشار که می‌تواند به‌وسیله فرآیند پرس داغ (HP^1)، سینتر پلاسمای جرقه‌ای (SPS^2) و پرس ایزواستاتیک داغ (HIP^3) انجام شود و یا (۲) ساخت سرامیک‌های نیتريد سيليسيم متخلخل به‌وسیله فرآیند پیوند واکنشی پودر فشرده شده سیلیکون بوده است. سرامیک نیتريد سيليسيم تهیه شده به‌وسیله هر دو این روش‌ها به دلیل وجود تفاوت در میزان چگالی، دارای ساختار دو وجهی متمایز و در نتیجه دارای خواص حرارتی، مکانیکی و ترمومکانیکی متفاوتی است [۴، ۸-۹]. با توجه به نتایج پژوهش‌های انجام شده در زمینه تف‌جوشی سرامیک‌های نیتريد سيليسيم و خواص مکانیکی و دی‌الکتریک مطلوب قطعات تف‌جوشی شده توسط فرآیند پرس داغ [۱۰ و ۱۳] در مقایسه با نتایج سایر روش‌ها مانند تف‌جوشی بدون فشار

[۱۲-۱۳] و سینتر پلاسمای جرقه‌ای [۱۴-۱۵]، روش پرس داغ به‌عنوان فرآیند تف‌جوشی انتخاب شد. در پژوهش ليو و همکارانش^۴ [۱۶] سرامیک‌های نیتريد سيليسيم به‌وسیله فرآیند پرس داغ در دمای 1800°C و به کمک درصد افزودنی‌های مختلف Y_2O_3 تهیه شدند. این سرامیک‌ها دارای خواص مکانیکی شامل سختی $18/37\text{ GPa}$ ، استحکام خمشی در حدود $1/1\text{ GPa}$ ، خواص دی‌الکتریک شامل ثابت دی‌الکتریک $8/7$ و اتلاف دی‌الکتریک زیر $0/1$ بوده است. در پژوهشی دیگر کیانگ و همکارانش^۵ [۱۷] به بررسی تأثیر مشخصات پودر اولیه بر روی رفتار تف‌جوشی، ریزساختار و خواص مکانیکی سرامیک‌های نیتريد سيليسيم پرس شده پرداختند. مشخص شد که: (۱) اندازه ذرات پودر اولیه دلیل اصلی در افزایش اندازه دانه $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ است و (۲) نسبت فاز β/α بالا موجب تسریع ناهمسانگرد در رشد دانه و در نتیجه افزایش خواص مکانیکی خواهد شد.

در طول فرآیند سینترینگ، در ابتدا پودرهای $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ در فاز مایع ایجاد شده ناشی از واکنش افزودنی‌های تف‌جوشی و لایه SiO_2 سطحی ذرات نیتريد سيليسيم حل شده و پس از آن دانه‌های $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ رسوب می‌کند. دانه‌های کشیده شده $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ از نظر ریزساختار مشابه الیاف تقویت‌کننده بوده و ساختار را مستحکم می‌کند، به‌طور مشخص می‌توان گفت خواص سرامیک $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ به‌شدت وابسته به ریزساختار است [۱۸-۲۰]. از این رو ریزساختارها با مورفولوژی‌های مختلف مانند طول، عرض و نسبت طول به عرض دانه‌های کشیده شده به‌طور مستقیم بر روی خواص مکانیکی سرامیک‌ها تأثیرگذار هستند. طراحی ریزساختاری یک فاکتور کلیدی در بهینه‌سازی پارامترهای تف‌جوشی و خواص مکانیکی سرامیک‌های نیتريد سيليسيم است.

پرس گرم نیتريد سيليسيم یکی از منحصربه‌فردترین فرآیندها برای تولید سرامیک‌های نیتريد سيليسيم با چگالی نزدیک به تئوری است، در این فرآیند اعمال فشار باعث بهبود فرآیند نفوذ فاز مایع درون دانه‌های $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ و تبدیلات فازی



شکل (۱): الگوی پراش حاصل از پودر نیتريد سيليسيم اوليه.

در مسیر ساخت نمونه‌های سرامیکی، در ابتدا پودر نیتريد سيليسيم با ۶/۵٪ وزنی کمک تف‌جوش ایتريا توزین شد. پودرهای توزین شده به‌منظور فعال‌سازی سطحی تحت فرآیند آسیاکاری مکانیکی در اتمسفر گاز نیتروژن به مدت ۱۲ ساعت قرار گرفتند، در این فرآیند از اتانول به‌عنوان محیط آسیاکاری استفاده شد، فرآیند خروج رطوبت نیز به کمک دستگاه خشک‌کن در دمای ۸۰°C به مدت ۲۴ ساعت انجام شد. همچنین، به‌منظور حذف آگلومره‌های نرم تولید شده در حین فرآیند رطوبت‌زدایی پودر از الک مش ۲۰۰ عبور داده شد.

تف‌جوشی نمونه‌ها به‌وسیله دستگاه پرس داغ (ساخت شرکت خلأ پوشان) و با استفاده از قالب‌های استوانه‌ای شکل گرافیتی انجام شد. جهت جلوگیری از نفوذ کربن به درون پودر از کاغذهای گرافیتی ایزوله کننده پودر استفاده شد. تف‌جوشی در بازه دمایی ۱۵۰۰-۱۸۰۰°C با نرخ حرارت‌دهی ۱۰°C/min و مدت نگه‌داری در بیشینه دما ۴ ساعت، تحت اتمسفر نیتروژن با فشار پرس ۳۰MPa انجام شد [۲۳]. سیکل سرمایش نمونه‌ها از دمای تف‌جوشی تا دمای محیط مطابق سرعت حرارت‌دهی در نظر گرفته و در نهایت قطعات تف‌جوشی شده به شکل قرص‌های با قطر ۳۰ میلی‌متر ساخته شدند که از فرآیند پولیش زنی برای حذف

می‌شود. همان‌طور که مشخص است مقدار رشد دانه ناهمسانگرد و کسر حجمی دانه‌های کشیده شده β - Si_3N_4 می‌تواند به‌وسیله دمای واکنش بهبود یابد [۲۱-۲۳]. در این پژوهش، اثر دمای تف‌جوشی بر روی دانه‌های β - Si_3N_4 از منظر مورفولوژی، استحکام مکانیکی و خواص مخابراتی مورد بررسی قرار گرفته است، بهبود شرایط و فرآیند تف‌جوشی سرامیک‌های نیتريد سيليسيم به‌وسیله بهینه‌سازی دمای سینترینگ و دست‌یابی به بالاترین خواص مکانیکی و دی‌الکتریک با توجه به اثر فشار و دما و تشکیل و نفوذ فاز مایع تف‌جوشی به‌واسطه فشار فرآیند پرس گرم از نقاط نوآورانه این پژوهش است.

۲- مواد و روش تحقیق

۲-۱- مواد اولیه و روش انجام آزمایش

در شکل ۱ الگوی پراش پرتوایکس حاصل از پودر نیتريد سيليسيم خریداری شده ارائه شده است. آنالیز عنصری (ICP) پودر نیتريد سيليسيم نشان داد که این پودر حاوی ناخالصی‌هایی با درصد‌های ارائه شده در جدول ۱ است و از نظر فازی دارای ۹۵/۶٪ فاز آلفا و ۴/۴٪ فاز بتا است.

جدول (۱): آنالیز عنصری ICP از پودر نیتريد سيليسيم خریداری شده.

نوع ناخالصی	آلومینیوم	کلر	پتاسیم	کلسیم	آهن
مقدار برحسب ppm	۱۵	۷	۴	۱	۱۰

در جدول ۲ مشخصات مواد اولیه استفاده شده در پژوهش حاضر ارائه شده است.

جدول (۲): مشخصات مواد اولیه استفاده شده در پژوهش.

نام ماده	اندازه ذرات (μm)	خلوص (%)	کشور سازنده	شرکت سازنده
نیتريد سيليسيم	۰/۵	+۹۹	چین	شرکت Luoyang
اکسید ایتريا	>۴	+۹۹	ایران	شرکت ایلیا صنعت

گرافیت نفوذ کرده بر روی سطح آنها استفاده شد. در جدول ۳ دماهای تف‌جوشی و مشخصات نمونه‌ها ارائه شده است.

جدول (۳): دماهای تف‌جوشی نمونه‌های ساخته شده به‌وسیله فرآیند پرس داغ.

نمونه	دمای تف‌جوشی (°C)
Y۶.۵T۱.۵	۱۵۰۰
Y۶.۵T۱.۶	۱۶۰۰
Y۶.۵T۱.۷	۱۷۰۰
Y۶.۵T۱.۸	۱۸۰۰

۲-۲- مشخصه‌یابی

چگالی نمونه‌ها بر اساس فرآیند ارشمیدس و مطابق با استاندارد ASTM C۳۷۳ مورد محاسبه قرار گرفته است. برای شناسایی و بررسی فاز بلورین، از دستگاه پراش پرتوایکس مدل "Philips PW۳۷۱۰" استفاده شد. زاویه ۲θ در این آزمون در بازه ۱۰ تا ۸۰ درجه و با تابش CuKα با طول موج ۱.۵۴۰۶ Å، ولتاژ ۲۰kV و شدت جریان ۳۰mA انجام شد.

آزمون استحکام خمشی طبق استاندارد ASTM-C۱۱۶۱-۱۳ با استفاده از دستگاه استحکام فشاری SANTAM مدل "STM-۲۰" انجام شد. اگرچه دستگاه اندازه‌گیری آزمون استحکام، استحکام سه‌نقطه‌ای را پس از انجام آزمون گزارش می‌کند، اما با توجه به تعداد محدود نمونه‌ها و هم‌چنین جهت افزایش ضریب اطمینان، پس از آنالیز، از فرمول ۱ استحکام سه‌نقطه‌ای محاسبه شد:

$$\sigma = \frac{3FL}{2bd^2} \quad (1)$$

که در این رابطه σ ، استحکام خمشی و یا سه‌نقطه‌ای برحسب مگاپاسکال، F، حداکثر نیروی اعمالی در لحظه شکست نمونه برحسب نیوتن، L، فاصله بین دو سر تحت فشار در نمونه برحسب میلی‌متر، b، عرض نمونه برحسب میلی‌متر و d، ارتفاع نمونه برحسب میلی‌متر است. مطابق استاندارد ذکر شده و شرایط قالب دستگاه (فاصله بین دو تکیه‌گاه)، نمونه‌ها جهت انجام آزمون استحکام خمشی با ابعاد ۳ × ۴ mm^۳

۱۶ × آماده‌سازی شدند.

آزمایش سختی‌سنجی با استفاده از دستگاه سختی‌سنجی مدل "یونیورسال UVI" ساخت شرکت KOOPA، به روش ویکرز انجام گرفت. برای اندازه‌گیری سختی ابتدا نمونه‌های برش داده شده مانع سرد و سپس سطح نمونه‌های مانع شده سنباده زنی، پولیش و آزمون سختی‌سنجی انجام شد. برای هر نمونه حداقل ۳ بار اندازه‌گیری از مناطقی با فاصله معین از محل‌های قبلی انجام گرفت و میانگین اعداد به‌دست آمده گزارش شد. در این روش با استفاده از فرمول ۲ مقدار سختی نمونه‌ها محاسبه شد که در این رابطه Hv سختی ویکرز، F مقدار بار برحسب Kgf و d میانگین قطرهای مربع برحسب mm است.

$$H_v = 1.854 F/d^2 \quad (2)$$

به‌منظور اندازه‌گیری ثابت دی‌الکتریک و تانژانت اتلاف نمونه‌ها از دستگاه آنالیز شبکه برداری (ساخت آمریکا، مدل "E۸۲۶۳" شرکت Agilent technologies) استفاده شد. همه نمونه‌ها با ابعاد ۳ × ۱۰ × ۲۰ mm^۳ جهت انجام آزمون برش داده شدند. از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FE-SEM) مدل "TESCAN Mira۳" با ولتاژ کاری ۱۵kV ساخت کشور چک به‌منظور بررسی مورفولوژی و چگونگی پراکندگی ذرات و هم‌چنین بررسی ریزساختار سطح شکست و سطح پولیش خورده قطعات تف‌جوشی و پوشش داده شده با طلا استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- اثر دما بر چگالش و تراکم‌پذیری

در طی فرآیند چگال نمودن نمونه‌های سرامیکی نیتريد سلیسیم توسط عملیات تف‌جوشی در حضور فاز مایع، به‌طور عمده نیروی محرکه برای چگال نمودن نمونه‌ها چیدمان مجدد ذرات ناشی از جریان موینگی فاز مایع می‌باشد [۱۸] و [۲۴]. در جدول ۴ چگالی نسبی نمونه‌ها بعد از فرآیند تف‌جوشی ارائه شده است. نمونه HY۶.۵T۱.۶ در

سرامیکی HY۶.۵T۱.۵، نشان‌دهنده آن است که ریزساختار این ماده شامل دو فاز عمده ی آلفا و بتا نیتريد سيليسيم است. همچنين، در ديرگ نمونه‌ها با افزايش دماي تف‌جوشي، فازهاي ثانويه چون $Y_5Si_2O_{12}N$ و $Y_2Si_2O_7N_4$ تشكيل شده است. شدت پيك‌هاي حاصل از پراش اشعه ایکس بيانگر آن است که در نمونه HY۶.۵T۱.۵ فازهاي عمده شامل آلفا و بتا نیتريد سيليسيم است و علت آن را می‌توان به دمای پایین فرآیند تف‌جوشي نسبت داد؛ در این حالت فاز مایع به میزان کافی تشکیل نشده و در نتیجه فرآیند نفوذ، انحلال و رسوب‌گذاری که مکانیزم محتمل در تف‌جوشي سرامیک‌های بر پایه نیتريد سيليسيم است به‌صورت مناسب انجام نگرفته است و لذا شاهد حضور فاز آلفا در کنار فاز بتا می‌باشيم [۲۳]. همان‌طور که در شکل ۲ مشاهده می‌شود؛ با افزايش دماي پرس داغ از $1500^{\circ}C$ به $1600^{\circ}C$ ، پیک‌های مربوط به فازهاي آلفا نیتريد سيليسيم و $Y_5Si_2O_{12}N$ ناپدید شده و ظهور فاز $Y_2Si_2O_7N_4$ و افزايش شدت پیک‌های مربوط به فاز بتا نیتريد سيليسيم مشاهده می‌شود که بیانگر انجام هر چه بهتر فرآیند انحلال، نفوذ و رسوب‌گذاری و پیشرفت فرآیند تف‌جوشي و تبدیل هر چه بیشتر فاز آلفا نیتريد سيليسيم به بتا نیتريد سيليسيم است [۲۹]. با افزايش دماي تف‌جوشي به $1800^{\circ}C$ ، همانند نمونه HY۶.۵T۱.۶، پیک‌های مربوط به آلفا نیتريد سيليسيم ناپدید و پیک‌های مربوط به فاز بتا نیتريد سيليسيم مشاهده شده است؛ با این تفاوت که شدت پیک‌ها نسبت به نمونه HY۶.۵T۱.۶ کاهش یافته است. نتایج نشان می‌دهد که تغییرات دماي تف‌جوشي می‌تواند روی ترکیب فاز مرزدهانه‌ای نیتريد سيليسيم نهایی اثر بگذارد. با افزايش دماي تف‌جوشي تا $1600^{\circ}C$ شدت پیک‌های مربوط به فازهاي ثانويه مرزدهانه‌ای افزايش یافته است که می‌توان آن را به کریستاله شدن بیشتر فازهاي مرزدهانه‌ای با افزايش دما نسبت داد [۳۰-۳۲].

مقایسه با سایر نمونه‌ها دارای بیشترین میزان چگالی نسبی (نسبت به چگالی تئوری) با مقدار $0.97/51 \pm 0.5$ بوده است. کاهش چگالی در نمونه سرامیکی HY۶.۵T۱.۵ نسبت به HY۶.۵T۱.۶ را می‌توان ناشی از کاهش ضریب نفوذ با کاهش دما دانست که این امر به علت بالا بودن گرانشی فاز مایع شکل گرفته شده در دماهای پایین می‌باشد؛ بنابراین با کاهش دما کشش سطحی نیز کاهش یافته و با کاهش آن، نیروی موینگی کاهش و در نتیجه فاز مایع، جریان مناسبی در بین ذرات جامد نخواهد داشت که این امر منجر به کاهش چگالی در نمونه HY۶.۵T۱.۵ شده است [۲۵-۲۶]. با افزايش دماي تف‌جوشي به $1800^{\circ}C$ در نمونه HY۶.۵T۱.۸ چگالی نسبی کاهش یافته که علت آن را می‌توان به تجزیه نیتريد سيليسيم در دماي بالاتر از $1750^{\circ}C$ در فشار نیتروژن اعمالی برابر با ۱ اتمسفر نسبت داد [۲۷-۲۸].

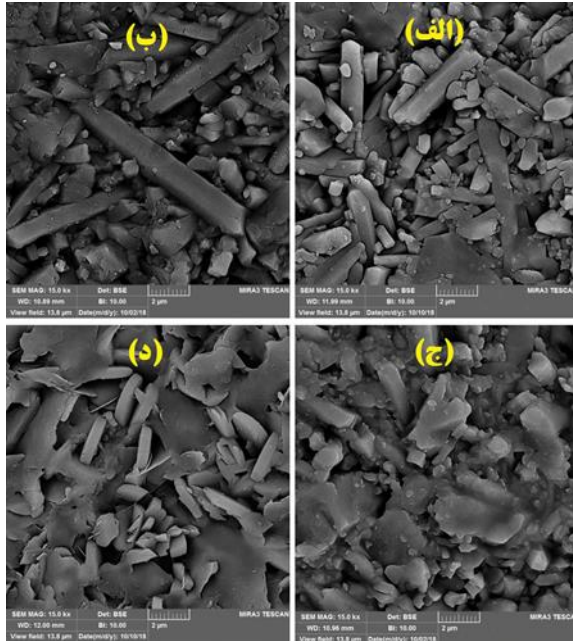
جدول (۴): چگالی نسبی نمونه‌های تف‌جوشي شده.

نمونه	چگالی نسبی (%)
Y۶.۵T۱.۵	$95 \pm 54 \cdot 0/5$
Y۶.۵T۱.۶	$97 \pm 51 \cdot 0/4$
Y۶.۵T۱.۷	$95 \pm 48 \cdot 0/35$
Y۶.۵T۱.۸	$96 \pm 35 \cdot 0/43$

۳-۲- اثر دما بر ترکیبات فازی

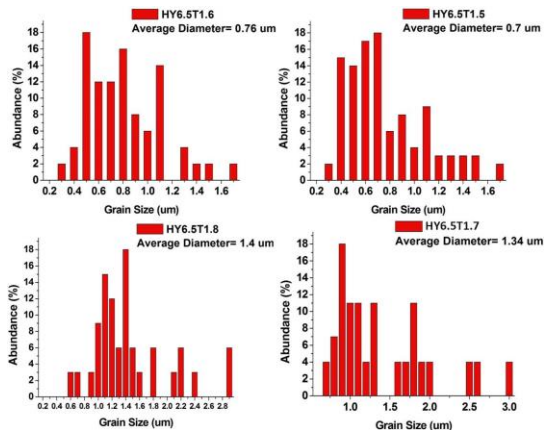
در شکل ۲ الگوهای پراش اشعه ایکس (XRD) نمونه‌های تف‌جوشي شده در دماهای مختلف نشان داده شده است. الگوهای پراش حاصل از نمونه‌های مختلف، همه عناصر موجود در پودر اولیه را به‌صورت‌های مختلف فازی نشان می‌دهند و این بیانگر بلورینه شدن عناصر در ساختارهای کریستالی مختلف در طی فرآیند پرس داغ می‌باشد، ولی توسط پراش اشعه ایکس، فازهای شیشه‌ای مربوط به سیستم دوتایی $SiO_2-Y_2O_3$ و یا سیستم سه‌تایی $Si_2O_7-SiO_2-Y_2O_3$ قابل‌شناسایی نمی‌باشند. در جدول ۵ میزان فاز بتا نیتريد سيليسيم موجود در نمونه‌های سرامیکی با استفاده از رابطه معروف به گازارا - مسیر^۶ (رابطه شماره ۳) محاسبه و گزارش شده است. الگوی پراش پرتو ایکس مربوط به نمونه

است. همان‌طور که مشخص است با افزایش دمای تف‌جوشی از 1500°C به 1800°C قطر متوسط دانه‌ها از $0.7\ \mu\text{m}$ به $1.4\ \mu\text{m}$ افزایش یافته است.



شکل (۳): مقایسه تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)

حاصل از نمونه‌های پولیش و اچ شیمیایی شده: الف) HY6.5T1.5 ، ب) HY6.5T1.6 ، ج) HY6.5T1.7 و د) HY6.5T1.8 .



شکل (۴): میانگین توزیع اندازه دانه نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای مختلف.

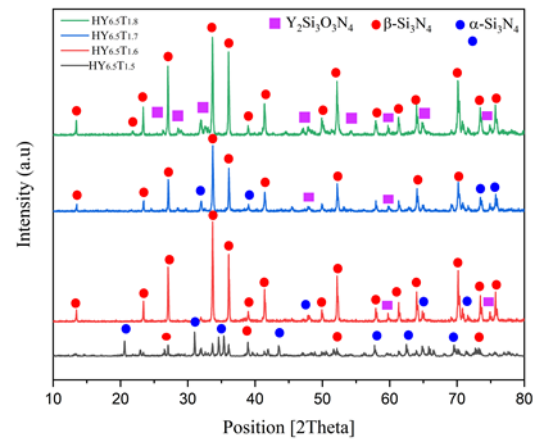
۳-۴- اثر دما بر خواص مکانیکی

به‌طور کلی، استحکام خمشی سرامیک‌ها با چگالی نسبی ارتباط مثبتی دارد. شایان ذکر است که ریز ساختار هم برای استحکام خمشی به‌عنوان یک پارامتر حساس مطرح است.

$$\beta - \text{Si}_3\text{N}_4 \text{ (wt\%)} = \frac{I_{\beta(100)} + I_{\beta(210)}}{I_{\beta(100)} + I_{\beta(210)} + I_{\alpha(210)} + I_{\alpha(100)}} \quad (3)$$

جدول (۵): میزان فاز بتا نیتريد سيليسيم در نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای مختلف.

نمونه	فاز بتا نیتريد سيليسيم (%)
Y6.5T1.5	95/45
Y6.5T1.6	~100
Y6.5T1.7	~100
Y6.5T1.8	~100



شکل (۲): مقایسه الگوهای پراش اشعه ایکس نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای مختلف.

۳-۳- اثر دما بر ریزساختار

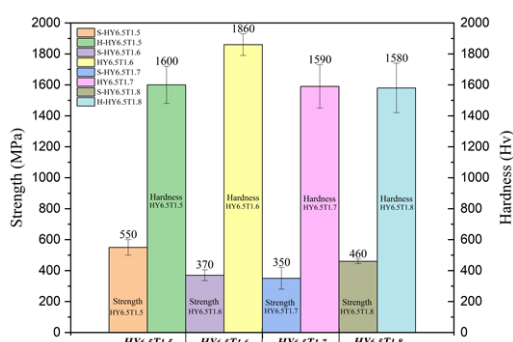
در شکل ۳ تصاویر میکروسکوپ الکترونی حاصل از الکترون‌های برگشتی ارائه شده است، در نمونه HY6.5T1.6 نسبت به HY6.5T1.5 دانه‌های میله‌ای شکل درشت‌تر و کشیده‌تر شده و می‌توان بیان داشت که نمونه دارای ریزساختار دوگانه می‌باشد. مورفولوژی نمونه‌های HY6.5T1.7 و HY6.5T1.8 را می‌توان به‌گراوری پایین فاز مایع نسبت داد که در این شرایط، سرعت نفوذ یون‌ها (نیتروژن و سیلیسیم) بالا بوده و مدت زمانی که فاز مایع تشکیل شده قابلیت حفظ خود در سطح فوق اشباع را داشته، محدود است [۳۳]، بنابراین فرآیند جوانه‌زنی و رشد طولی دانه‌ها میسر نشده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود نسبت طول به قطر ناچیز است. در شکل ۴ میانگین توزیع اندازه دانه نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای مختلف ارائه شده

در نمونه HY6.5T1.6 در مقایسه با سایر نمونه‌ها را می‌توان به بالا بودن مقدار چگالی نسبی بعد از فرآیند تف‌جوشی (۰/۴) \pm (۹۷/۵۱) نسبت داد.

یکی دیگر از عوامل مؤثر بر خواص مکانیکی سرامیک‌ها فاکتور "نسبت طول به قطر دانه" است. عموماً استحکام سرامیک‌های نیتريد سيليسيم با افزایش نسبت طول به قطر دانه‌های کشیده شده فاز β افزایش می‌یابد [۳۸]. هم‌چنین با فرض چگالش بالا در نمونه‌ها می‌توان گفت نسبت طول به قطر کمتر، سختی بالاتری به همراه خواهد داشت [۲۳]. در جدول ۶ خواص مکانیکی، نسبت طول به قطر دانه‌ها و متوسط اندازه دانه‌های نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای مختلف ارائه شده است. با توجه به جدول ۶ می‌توان بیان نمود که با افزایش نسبت طول به قطر دانه‌ها، استحکام خمشی و سختی روند معنی‌داری از خود نشان نمی‌دهد و برای توجیه این رفتار نوسانی مطابق آنچه گفته شد می‌بایست فاکتورهای دیگری همانند متوسط اندازه دانه، درصد فاز بتا و آلفا و چگالی نسبی نمونه‌ها را بررسی نمود.

جدول ۶. خواص مکانیکی، نسبت طول به قطر دانه‌ها و متوسط اندازه دانه‌های نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای مختلف.

نمونه	نسبت طول به قطر دانه‌ها	متوسط اندازه دانه (μm)	استحکام خمشی (MPa)	سختی (HV)
Y6.5T1.5	۴/۷۲	۰/۷	۵۵۰ \pm ۹/۵	۱۶۰۰ \pm ۳۹
Y6.5T1.6	۴/۷۹	۰/۷۶	۳۷۰ \pm ۵/۷	۱۸۶۰ \pm ۲۱/۴
Y6.5T1.7	۵/۴۷	۱/۳۴	۳۵۰ \pm ۳/۴	۱۵۹۰ \pm ۴۵/۵
Y6.5T1.8	۶/۲۱	۱/۴	۴۶۰ \pm ۷/۱	۱۵۸۰ \pm ۴۳/۳



شکل (۵): مقایسه خواص مکانیکی (استحکام خمشی و سختی ویکرز) در نمونه‌های مختلف تف‌جوشی شده به روش پرس داغ.

به‌عنوان مثال مورفولوژی دانه‌های بلوری، اندازه و نسبت طول به قطر دانه‌ها می‌تواند بر استحکام خمشی تأثیرگذار باشد.

شکل ۵ استحکام خمشی و سختی ویکرز نمونه‌های مختلف تف‌جوشی شده به روش پرس داغ را نشان می‌دهد. بدیهی است که خواص مکانیکی مطلوب سرامیک نیتريد سيليسيم به‌وسیله ریزساختاری متشکل از دانه‌های کشیده‌میل‌ای شکل و در هم تنیده حاصل می‌شود [۳۴]. همان‌طور که از شکل ۵ مشخص است با تغییر دمای تف‌جوشی، استحکام خمشی در محدوده $350 \pm 3/4$ MPa تا $550 \pm 9/5$ MPa دچار تغییر شده است. میزان استحکام خمشی نمونه‌ها از رابطه هال-پچ [۳۵] تبعیت می‌نماید و نمونه سینتر شده در دمای 1500°C ، با دارا بودن کمترین مقدار قطر متوسط ($0.7\mu\text{m}$) در بین سایر نمونه‌ها، بیشترین مقدار استحکام خمشی را به خود اختصاص داده است [۳۶]. با بررسی نتایج آزمون استحکام خمشی می‌توان بیان کرد که نمونه HY6.5T1.8 با وجود چگالی نسبی و درصد فاز بتا بالا در مقایسه با نمونه HY6.5T1.5 استحکام خمشی پایین‌تری از خود نشان داد. دلیل این اتفاق احتمالاً به خاطر رشد افراطی دانه‌ها در دمای تف‌جوشی بالا بوده و افت خواص مکانیکی را به همراه داشته است.

به‌طور کلی سختی سرامیک‌ها به ترکیبات شیمیایی، ساختار کریستالی و نوع پیوندهای شیمیایی مواد وابسته است. علاوه بر این خواص مکانیکی مواد سرامیکی به میزان تراکم‌پذیری آنها در مرحله تف‌جوشی وابسته است [۳۷]. در سرامیک نیتريد سيليسيم سختی فاز آلفا از فاز بتا بالاتر می‌باشد [۲۳]. سختی ویکرز نمونه‌های HY6.5T1.6 و HY6.5T1.8 در مقایسه با دیگر نمونه‌ها به ترتیب دارای بیشترین و کمترین مقدار $1860 \pm 21/4$ HV و $1580 \pm 43/3$ HV است. نمونه HY6.5T1.5 با داشتن بیشترین فاز آلفا و کمترین مقدار نسبت طول به قطر دانه انتظار می‌رفت دارای بالاترین میزان سختی باشد اما به دلیل میزان چگالی نسبی پایین به حداکثر مقدار سختی خود نرسید. لذا علت بالا بودن سختی ویکرز

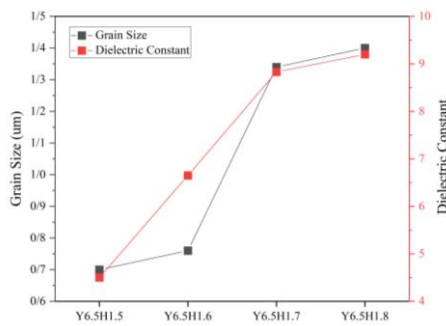
۳-۵- اثر دما بر خواص دی‌الکتریک

در سرامیک‌های پایه نیتريد سيليسيم مقدار، توزيع، اندازه دانه و مورفولوژی ذرات آلفا و بتا فاکتوری قطعی در تعیین خواص نهایی قطعات تولید شده هستند. اساساً خواص دی‌الکتریک سرامیک‌ها به ریزساختار آنها بستگی دارد. در حالت کلی، اتلاف دی‌الکتریک متأثر از غلظت ناخالصی‌ها، نواقص شبکه‌ای، چگالی و بلورینگی فاز ثانویه است [۳۹-۴۰]. در شکل ۶ تغییرات ثابت دی‌الکتریک (الف) و تانژانت اتلاف (ب) با تغییر دمای تف‌جوشی در فرکانس ۱۰ GHz در نمونه‌های مختلف ارائه شده است. با توجه به شکل (۶ الف) می‌توان بیان نمود که با افزایش دمای تف‌جوشی، ثابت دی‌الکتریک از ۴/۵ به ۹/۲ افزایش یافته است. در همین راستا، پارک و همکارانش^۷ [۴۱] در پژوهش خود نشان دادند که افزایش اندازه دانه، منجر به افزایش در خواص دی‌الکتریک سرامیک‌های نیتريد سيليسيم به همراه افزودنی Y_2O_3 از طریق پرس داغ شده است. علاوه بر تأثیر اندازه دانه بر خواص دی‌الکتریک، می‌توان به تأثیر فاز آلفا و بتا نیتريد سيليسيم اشاره کرد. فاز بتا نیتريد سيليسيم دارای ثابت دی‌الکتریک بالاتری نسبت به آلفا نیتريد سيليسيم است؛ بنابراین با افزایش دمای تف‌جوشی و افزایش میزان فاز بتا نیتريد سيليسيم در نمونه‌های تف‌جوشی شده ثابت دی‌الکتریک افزایش یافته است. علاوه بر موارد گفته شده، ثابت دی‌الکتریک به درصد تخلخل و چگالی نمونه‌ها وابسته است و طبق رابطه ذیل ثابت دی‌الکتریک با میزان تخلخل موجود در نمونه نسبت عکس دارد و با افزایش میزان تخلخل (کاهش چگالی)، میزان ثابت دی‌الکتریک کاهش می‌یابد.

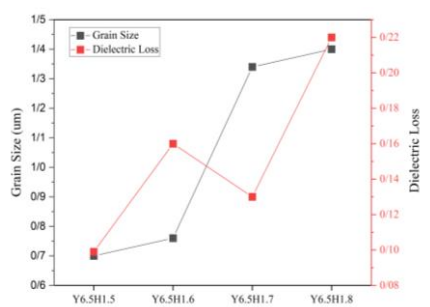
$$\varepsilon = \varepsilon_0 \cdot 1 - p \quad (4)$$

در این رابطه، ε_0 ، گذردهی الکتریکی مربوط به ماده ۱۰۰٪ متراکم و p میزان درصد تخلخل‌ها است. با توجه به روند افزایشی ثابت دی‌الکتریک و مقادیر چگالی نسبی نمونه‌ها نمی‌توان ارتباطی بین این فاکتور و ثابت دی‌الکتریک

استنباط کرد و اندازه دانه و ترکیب فازی گزینه‌های بهتری برای توجیه این رفتار به حساب می‌آیند. یکی از موارد تأثیرگذار بر تانژانت اتلاف دی‌الکتریک، ریزساختار و اندازه دانه است؛ به طوری که با افزایش اندازه دانه، میزان تانژانت اتلاف افزایش می‌یابد. با توجه به شکل ۶-ب، با افزایش دمای تف‌جوشی از 1500°C به 1800°C ، طول متوسط دانه‌ها از $0.7 \mu\text{m}$ به $1.4 \mu\text{m}$ و تانژانت اتلاف نیز از 0.099 به 0.22 افزایش یافته است. مکانیزم فیزیکی حاکم بر تأثیر اندازه دانه بر اتلاف دی‌الکتریک این است که میدان کریستال (بلور) با انقباض و جمع شدگی پیوندهای سطحی دچار تغییر می‌شود. کاهش اندازه دانه منجر به افزایش میدان‌های بلوری (میدان اعمالی توسط هر بلور به اطراف) شده و متعاقباً منجر به کاهش خواص دی‌الکتریک می‌شود. از سوی دیگر، بر طبق نتایج گزارش شده توسط سایر محققین، اتلاف دی‌الکتریک فاز بتا به صورت قابل توجهی، بزرگ‌تر از فاز آلفای ریز و درشت است و با نتایج به‌دست آمده در این پژوهش مطابقت دارد.



(الف)



(ب)

شکل (۶): تغییرات خواص دی‌الکتریک با تغییر متوسط اندازه دانه در فرکانس ۱۰ GHz: الف) ثابت دی‌الکتریک و ب) تانژانت اتلاف.

۶, pp. ۱۳۱۴-۱۳۳۸, Mar. ۲۰۱۰, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.msea.۲۰۰۹.۰۹.۰۶۴.

[۴] M. Pettersson, Z. Pakdaman, H. Engqvist, Y. Liu, Z. Shen & E. Östholms, "Spark plasma sintered β -phase silicon nitride with Sr and Ca as a sintering aid for load bearing medical applications", *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. ۳۲, no. ۱۱, pp. ۲۷۰۵-۲۷۰۹, Aug. ۲۰۱۲, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.jeurceramsoc.۲۰۱۱.۱۲.۰۲۷.

[۵] X. J. Liu, Z. Y. Huang, Q. M. Ge, X. W. Sun & L. P. Huang, "Microstructure and mechanical properties of silicon nitride ceramics prepared by pressureless sintering with $MgO-Al_2O_3-SiO_2$ as sintering additive", *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. ۲۵, no. ۱۴, pp. ۳۳۵۳-۳۳۵۹, ۲۰۰۵, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.jeurceramsoc.۲۰۰۴.۰۸.۰۲۵.

[۶] S. Guo, N. Hirosaki, Y. Yamamoto, T. Nishimura & M. Mitomo, "Dependence of fracture stress on applied stress rate in a $Yb_2O_3-SiO_2$ -doped hot-pressed silicon nitride ceramic", *J. Mater. Res.*, vol. ۱۶, no. ۱۱, pp. ۳۲۵۴-۳۲۶۱, ۲۰۰۱, doi: ۱۰.۱۵۵۷/JMR.۲۰۰۱.۰۴۴۸.

[۷] P. F. Becher & et al, "Microstructural Design of Silicon Nitride with Improved Fracture Toughness: I, Effects of Grain Shape and Size", *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. ۸۱, no. ۱۱, pp. ۲۸۲۱-۲۸۳۰, Jan. ۲۰۰۵, doi: ۱۰.۱۱۱۱/j.۱۱۵۱-۲۹۱۶.۱۹۹۸.tb۰۲۷۰۲.x.

[۸] V. Sharma, S. Nemat-Nasser & K. S. Vecchio, "Effect of grain-boundary phase on dynamic compression fatigue in hot-pressed silicon nitride", *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. ۸۱, no. ۱, pp. ۱۲۹-۱۳۹, ۱۹۹۸, doi: ۱۰.۱۱۱۱/j.۱۱۵۱-۲۹۱۶.۱۹۹۸.tb۰۲۳۰۴.x.

[۹] I. Bar-On, F. I. Baratta & K. Cho, "Crack stability and its effect on fracture toughness of hot-pressed silicon nitride beam specimens", *Journal of the American Ceramic Society*, vol. ۷۹, no. ۹, pp. ۲۳۰۰-۲۳۰۸, ۱۹۹۶, doi: ۱۰.۱۱۱۱/j.۱۱۵۱-۲۹۱۶.۱۹۹۶.tb۰۸۹۷۶.x.

[۱۰] ح. صدلاله و ا. نورمحمدی، "اثر فرآیند پرس گرم بر ریزساختار و خواص مغناطیسی آلیاژ نانو بلورین فایتمت"، مواد و فناوری‌های پیشرفته، دوره ۴، شماره ۱، صفحه ۴۷-۵۴، ۱۳۹۴.

۴- نتیجه‌گیری

در پژوهش حاضر اثر دماهای مختلف تف‌جوشی ($1800^{\circ}C$ و $1700^{\circ}C$ ، $1600^{\circ}C$ ، $1500^{\circ}C$) بر تراکم‌پذیری و ریزساختار و بهینه‌سازی خواص مکانیکی و دی‌الکتریک سرامیک‌های نیتريد سيليسيم با افزودنی Y_2O_3 تهیه شده به روش پرس داغ به مدت ۴h تحت فشار پرس ۳۰ MPa بررسی شده است. بالاترین نسبت چگالی واقعی به تئوری مربوط به نمونه $Y_6.5T1.6$ و برابر با ۹۷/۵۱٪ می‌باشد. طبق الگوی پراش حاصل از اشعه ایکس و رابطه گازارا-مسیر، در نمونه‌های $Y_6.5T1.7$ و $Y_6.5T1.6$ همه فاز آلفا به بتا تبدیل شده است و در نمونه $Y_6.5T1.5$ ، میزان تبدیل ۹۵/۴۵٪ بوده است. نمونه $Y_6.5T1.5$ ، با دارا بودن کمترین مقدار قطر متوسط ($0.7\mu m$) در مقایسه با سایر نمونه‌ها، بیشترین مقدار استحکام خمشی $9/5MPa \pm 550$ را به خود اختصاص داد. سختی و یکپارگی نمونه‌های $HY_6.5T1.8$ و $HY_6.5T1.6$ در مقایسه با دیگر نمونه‌ها به ترتیب دارای بیشترین و کمترین $HV 21/4 \pm 1860$ و $HV 43/3 \pm 1580$ است. مقدار با افزایش اندازه متوسط دانه‌ها و کاهش نسبت فازی β/α در اثر افزایش دمای تف‌جوشی، ثابت دی‌الکتریک و تانژانت اتلاف نمونه‌ها در فرکانس ۱۰GHz به ترتیب از ۴/۵ به ۹/۲ و از ۰/۰۹۹ به ۰/۲۲ افزایش یافته است.

۵- مراجع

[۱] H. Kaya, "The application of ceramic-matrix composites to the automotive ceramic gas turbine", *Compos. Sci. Technol.*, vol. ۵۹, no. ۶, pp. ۸۶۱-۸۷۲, May ۱۹۹۹, doi: ۱۰.۱۰۱۶/S۰۲۶۶-۳۵۳۸(۹۹)۰۰۱۶-۰.

[۲] Z. Krstic & V. D. Krstic, "Silicon nitride: the engineering material of the future", *J. Mater. Sci.*, vol. ۴۷, no. ۲, pp. ۵۳۵-۵۵۲, Jan. ۲۰۱۲, doi: ۱۰.۱۰۰۷/s۱۰۸۵۳-۰۱۱-۵۹۴۲-۵.

[۳] M. H. Bocanegra-Bernal & B. Matovic, "Mechanical properties of silicon nitride-based ceramics and its use in structural applications at high temperatures," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. ۵۲۷, no.

- Ceram. Int, vol. ۴۲, no. ۱۶, pp. ۱۸۶۴۱-۱۸۶۴۷, Dec. ۲۰۱۶, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۱۶.۰۹.۰۰۱.
- [۱۹] Q. G. Jiang & et al, "Influence of powder characteristics on hot-pressed Si₃N₄ ceramics", Sci. Sinter, vol. ۴۹, no. ۱, pp. ۸۱-۸۹, ۲۰۱۷, doi: ۱۰.۲۲۹۸/SOS۱۷۰۱۰۸۱J.
- [۲۰] H. Seiner & et al, "Elastic properties of silicon nitride ceramics reinforced with graphene nanofillers", Mater. Des, vol. ۸۷, pp. ۶۷۵-۶۸۰, ۲۰۱۵, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.matdes.۲۰۱۵.۰۸.۰۴۴.
- [۲۱] J. Wippler, S. Fünfschilling, F. Fritzen, T. Böhlke & M. J. Hoffmann, "Homogenization of the thermoelastic properties of silicon nitride", Acta Mater, vol. ۵۹, no. ۱۵, pp. ۶۰۲۹-۶۰۳۸, ۲۰۱۱, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.actamat.۲۰۱۱.۰۶.۰۱۱.
- [۲۲] P. Šajgalik, J. Dusza & M. J. Hoffmann, "Relationship between Microstructure, Toughening Mechanisms, and Fracture Toughness of Reinforced Silicon Nitride Ceramics", J. Am. Ceram. Soc, vol. ۷۸, no. ۱۰, pp. ۲۶۱۹-۲۶۲۴, Oct. ۱۹۹۵, doi: ۱۰.۱۱۱۱/j.۱۱۵۱-۲۹۱۶.۱۹۹۵.tb۰۸۰۳۱.x.
- [۲۳] B. Ma, Y. Tang & C. Deng, "Effects of Al₂O₃-Y₂O₃/Yb₂O₃ additives on microstructures and mechanical properties of silicon nitride ceramics prepared by hot-pressing sintering", Int. J. Appl. Ceram. Technol, May ۲۰۲۲, doi: ۱۰.۱۱۱۱/ijac.۱۴۰۸۱.
- [۲۴] Q. Dai, D. He, F. Meng, P. Liu & X. Liu, "Materials Science in Semiconductor Processing Dielectric constant, dielectric loss and thermal conductivity of Si₃N₄ ceramics by hot pressing with CeO₂ - MgO as sintering aid", Mater. Sci. Semicond. Process, vol. ۱۲۱, no. August ۲۰۲۰, p. ۱۰۵۴۰۹, ۲۰۲۱, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.mssp.۲۰۲۰.۱۰۵۴۰۹.
- [۲۵] S. Dahms, F. Gemse, U. Basler, H. P. Martin & A. Triebert, "Diffusion joining of silicon nitride ceramics," Est. J. Eng, vol. ۱۵, no. ۴, p. ۳۰۱, ۲۰۰۹, doi: ۱۰.۳۱۷۶/eng.۲۰۰۹.۴.۰۷.
- [۲۶] Y. Song, L. Liu, D. Liu, X. Song & J. Cao, "Low-temperature bonding of Cu on Si₃N₄ substrate
- [۱۱] ص. منافی و م. خواجه لو، "تولید و ارزیابی خواص نانو کامپوزیت زمینه سرامیکی B₄C/BN توسط فرآیند پرس گرم"، نانو مواد، دوره ۱۰، شماره ۳۳، صفحه ۵۸-۵۳، ۱۳۹۶.
- [۱۲] H. Liang & et al, "YB₂C₃: A new additive for fabricating Si₃N₄ ceramics with superior mechanical properties and medium thermal conductivity", Ceram. Int, vol. ۴۶, no. ۴, pp. ۵۲۳۹-۵۲۴۳, Mar. ۲۰۲۰, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۱۹.۱۰.۲۷۲.
- [۱۳] Y. Han & et al, "Optimum sintering temperature of high quality silicon nitride ceramics under oscillatory pressure", Ceram. Int, vol. ۴۴, no. ۶, pp. ۶۹۴۹-۶۹۵۲, Apr. ۲۰۱۸, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۱۸.۰۱.۱۲۶.
- [۱۴] J. Yang, J. Yang, S. Shan, J. Gao & T. Ohji, "Effect of Sintering Additives on Microstructure and Mechanical Properties of Porous Silicon Nitride Ceramics", J. Am. Ceram. Soc, vol. ۸۹, no. ۱۲, pp. ۳۸۴۳-۳۸۴۵, Dec. ۲۰۰۶, doi: ۱۰.۱۱۱۱/j.۱۵۵۱-۲۹۱۶.۲۰۰۶.۱۲۹۴.x.
- [۱۵] W. Liu, W. Tong, X. Lu & S. Wu, "Effects of different types of rare earth oxide additives on the properties of silicon nitride ceramic substrates", Ceram. Int, vol. ۴۵, no. ۹, pp. ۱۲۴۳۶-۱۲۴۴۲, Jun. ۲۰۱۹, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۱۹.۰۳.۱۷۶.
- [۱۶] K. Jeong, J. Tatami, M. Iijima & T. Nishimura, "Spark plasma sintering of silicon nitride using nanocomposite particles", Adv. Powder Technol, vol. ۲۸, no. ۱, pp. ۳۷-۴۲, Jan. ۲۰۱۷, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.appt.۲۰۱۶.۰۶.۰۲۷.
- [۱۷] S. C. Luo, W. M. Guo, K. Plucknett & H. T. Lin, "Improved toughness of spark-plasma-sintered Si₃N₄ ceramics by adding HfB₂", Ceram. Int, vol. ۴۷, no. ۶, pp. ۸۷۱۷-۸۷۲۱, Mar. ۲۰۲۱, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۲۰.۱۱.۲۰۱.
- [۱۸] W. Liu, W. Tong, R. He, H. Wu & S. Wu, "Effect of the Y₂O₃ additive concentration on the properties of a silicon nitride ceramic substrate",

- [۳۴] H. Ding, Y. Hu, X. Li, Z. Zhao & H. Ji, "Microstructure, mechanical properties and sintering mechanism of pressureless-sintered porous Si_3N_4 ceramics with YbF_3 - MgF_2 composite sintering aids", *Ceram. Int.*, vol. ۴۶, no. ۲, pp. ۲۵۵۸-۲۵۶۴, Feb. ۲۰۲۰, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۱۹.۰۹.۱۱۴.
- [۳۵] A. Kumar, R. S. Rana, R. Purohit, K. K. Saxena, J. Xu & V. Malik, "Metallographic Study and Sliding Wear Optimization of Nano Si_3N_4 Reinforced High-Strength Al Metal Matrix Composites", *Lubricants*, vol. ۱۰, no. ۹, ۲۰۲۲, doi: ۱۰.۳۳۹۰/lubricants۱۰۰۹۰۲۰۲.
- [۳۶] J. Xu, K. Hattori, Y. Seino & I. Kojima, "Microstructure and properties of $\text{CrN}/\text{Si}_3\text{N}_4$ nano-structured multilayer films", *Thin Solid Films*, vol. ۴۱۴, no. ۲, pp. ۲۳۹-۲۴۵, ۲۰۰۲, doi:https://doi.org/۱۰.۱۰۱۶/S۰۰۴۰-۶۰۹۰(۰۲)۰۰۴۸۳-۲.
- [۳۷] F. Hu, T. Zhu, Z. Xie & J. Liu, "Effect of composite sintering additives containing non-oxide on mechanical, thermal and dielectric properties of silicon nitride ceramics substrate", *Ceram. Int.*, vol. ۴۷, no. ۱۰, pp. ۱۳۶۳۵-۱۳۶۴۳, May ۲۰۲۱, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۲۱.۰۱.۲۲۴.
- [۳۸] C. E. Lee, M. J. Kim, Y. J. Park, J. W. Ko, H. N. Kim & S. Bae, "The effect of silicon particle size on the characteristics of porous sintered reaction bonded silicon nitride", *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.*, vol. ۱۰۱, no. July, p. ۱۰۵۶۴۷, ۲۰۲۱.
- [۳۹] A. R. Von Hippel, "Dielectric Materials and Applications", Artech House, ۱۹۹۵.
- [۴۰] C. Gabriel, S. Gabriel, E. H. Grant, E. H. Grant, B. S. J. Halstead & D. Michael P. Mingos, "Dielectric parameters relevant to microwave dielectric heating", *Chem. Soc. Rev.*, vol. ۲۷, no. ۳, pp. ۲۱۳-۲۲۴, ۱۹۹۸, doi: ۱۰.۱۰۳۹/A۸۲۷۲۱۳Z.
- [۴۱] O. A. Lukianova & V. V. Sirota, "Dielectric properties of silicon nitride ceramics produced by free sintering", *Ceram. Int.*, vol. ۴۳, no. ۱۱, pp. ۸۲۸۴-۸۲۸۸, Aug. ۲۰۱۷, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۱۷.۰۳.۱۶۱.
- by using Ti/Cu thin films", *Mater. Lett.*, vol. ۳۲۰, p. ۱۳۲۳۳۰, ۲۰۲۲, doi: https://doi.org/۱۰.۱۰۱۶/j.matlet.۲۰۲۲.۱۳۲۳۳۰.
- [۲۷] H. Singh, M. D. Hayat, H. Zhang & P. Cao, "The decomposition of Si_3N_4 in titanium and its effect on wear properties," *Wear*, vol. ۴۲۰-۴۲۱, pp. ۸۷-۹۵, Feb. ۲۰۱۹, doi: ۱۰.۱۰۱۶/j.wear.۲۰۱۸.۱۲.۰۹۴.
- [۲۸] G. Cotin & et al, "A Confinement-Driven Nucleation Mechanism of Metal Oxide Nanoparticles Obtained via Thermal Decomposition in Organic Media", *Small*, vol. ۱۸, no. ۲۰, p. ۲۲۰۰۴۱۴, May ۲۰۲۲, doi: ۱۰.۱۰۰۲/sml.۲۰۲۲.۰۴۱۴.
- [۲۹] C. C. Ye, W. Q. Wei, X. Fu, C. H. Wang & H. Q. Ru, "Effect of sintering activation energy on Si_3N_4 composite ceramics", *Ceram. Int.*, vol. ۴۸, no. ۴, pp. ۴۸۵۱-۴۸۵۷, ۲۰۲۲, doi:https://doi.org/۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۲۱.۱۱.۰۲۱.
- [۳۰] A. H. Nassajpour-Esfahani, A. Alhaji, M. R. Hahftbaradaran-Esfahani, R. Emadi & A. Bahrami, "Oxidation and phase transformation behaviors of Si_3N_4 - $x\text{MgAl}_2\text{O}_4$ ($0 < x < 90$ wt.%) nanocomposites in vacuum, air, and nitrogen atmospheres", *Ceram. Int.*, vol. ۴۷, no. ۲۱, pp. ۳۰۸۰۷-۳۰۸۱۴, ۲۰۲۱, doi:https://doi.org/۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۲۱.۰۷.۲۶۱.
- [۳۱] C. Ye & et al, "Investigation on thermal conductivity and mechanical properties of Si_3N_4 ceramics via one-step sintering", *Ceram. Int.*, vol. ۴۷, no. ۲۳, pp. ۳۳۳۵۳-۳۳۳۶۲, ۲۰۲۱, doi: https://doi.org/۱۰.۱۰۱۶/j.ceramint.۲۰۲۱.۰۸.۲۳۸.
- [۳۲] Y. Wang & et al, "Synthesis of monodisperse and high-purity α - Si_3N_4 powder by carbothermal reduction and nitridation", *Adv. Powder Technol.*, vol. ۳۲, no. ۸, pp. ۳۱۰۱-۳۱۰۶, ۲۰۲۱, doi:https://doi.org/۱۰.۱۰۱۶/j.ap.۲۰۲۱.۰۶.۰۲۳.
- [۳۳] Z. Liu & et al, "Liquid-Phase-Assisted Catalytic Nitridation of Silicon and In Situ Growth of α - Si_3N_4 ", *Materials (Basel)*, vol. ۱۵, no. ۱۷, ۲۰۲۲, doi: ۱۰.۳۳۹۰/ma۱۵۱۷۶۰۷۴.

۶- پی‌نوشت

[۵] Jiang et al

[۶] Gazara-Meseir

[۷] Park et al

[۱] Hot Press

[۲] Spark Plasma Sintering

[۳] Hot Isostatic Pressing

[۴] Liu et al