فصلنامه‌ی علمی پژوهشی

علم و مهندسی سرامیک

دوره‌ی ۴، شماره‌ی ۴، زمستان ۱۳۹۴

بررسی رفتار زینترپذیری، تبلور و ویژگی‌های دی الکتریک کامپوزیت‌های تهیه شده از میکروذرات مولایت و شیشه ZBS ($ZnO-B_2O_3-SiO_2$)

مرجان اکبرپور، تورج عبادزاده، سارا بنی‌جمالی*

پژوهشگاه مواد و انرژی، پژوهشکده سرامیک

*banijamalis@yahoo.com

اطلاعات مقاله:

دریافت: ۱۳۹۴/۱۱/۱۷

پذیرش: ۱۳۹۴/۱۲/۱۷

کلید واژه:

کامپوزیت، مولایت، شیشه، تبلور، ویژگی‌های دی الکتریک

چکیده:

سرامیک‌های دی الکتریک به دلیل تنوع در ترکیب و داشتن ویژگی‌های دی الکتریک منطبق با نیازمندی‌های صنعت الکترونیک و ارتباطات بیسیم به‌شدت مورد توجه واقع شده‌اند. از جمله این سرامیک‌ها، می‌توان به کامپوزیت‌های سرامیکی اشاره کرد که با ارائه ویژگی‌های دی الکتریک مطلوب در محدوده فرکانس امواج مایکروویو و با داشتن یک فاز سرامیکی دی الکتریک و یک فاز شیشه به‌عنوان کمک‌زینتر در فناوری پخت همزمان کم‌دمای سرامیک‌ها مورد استفاده قرار گرفته‌اند. پژوهش حاضر بر مبنای ساخت کامپوزیت‌های دی الکتریک از میکروذرات مولایت و شیشه ZBS ($ZnO-B_2O_3-SiO_2$) جهت کاربرد به‌عنوان زیرپایه دی الکتریک در فناوری مذکور استوار است. در این راستا ابتدا کامپوزیت‌هایی حاوی مقادیر مختلف مولایت و شیشه ZBS تهیه شد و با توجه به ارزیابی رفتار زینترپذیری در دمای ۹۵۰°C، کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه به‌عنوان ترکیب بهینه به لحاظ رفتار زینترپذیری انتخاب و بررسی بیشتر بر این کامپوزیت متمرکز شد. با بررسی رفتار حرارتی کامپوزیت بهینه به هنگام زینتر و بر اساس نتایج آزمون پراش پرتوهای ایکس و آزمون حرارتی افتراقی، چنین نتیجه گرفته شد که مولایت در دمای ۸۸۰°C با فاز شیشه وارد واکنش می‌شود. محصول این واکنش فاز گانیت ($ZnO.Al_2O_3$) است که با توجه به بررسی‌های ریزساختاری با مورفولوژی منشوری‌شکل توزیع یکنواختی در بستر شیشه زمینه دارد. بررسی ویژگی‌های دی الکتریک با استفاده از دستگاه پردازشگر شبکه حاکی از آن بود که کامپوزیت بهینه دارای فرکانس تشدید در محدوده امواج ماکروویو است و با داشتن نفوذپذیری دی الکتریک ۴/۵ و فاکتور کیفیت ۴۷۰۲GHz، با نیازمندی‌های فناوری هدف همخوانی دارد.

۱- مقدمه

پیشرفت روزافزون صنایع الکترونیک و ارتباطات بیسیم، نیازمند کوچک‌سازی و افزایش هرچه بیشتر کارایی قطعات مورد استفاده در فرکانس امواج مایکروویو (۳۰۰GHz-۳۰۰MHz) است. فناوری پخت کم دما و همزمان سرامیک‌ها[1] موسوم به LTCC در راستای کاهش اندازه مدارات الکترونیکی از جایگاه ویژه‌ای برخوردار است. در

[1] Low Temperature Co-fired Ceramics

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

این فناوری چندین زیرپایه سرامیکی حاوی اجزای غیر فعال مدار مانند رزوناتورها، خازن‌ها، فیلترها و ... در یک مجموعه سه‌بعدی حاوی زیرپایه‌های سرامیکی ارائه می‌شوند [۴-۱]. از آنجایی که در یک ساختار LTCC الکترودگذاری با استفاده از چاپ فلزاتی مانند مس و نقره (با دمای ذوب پایین) انجام می‌شود، دمای زینتر همزمان این ساختار می‌بایست کمتر از ۹۵۰°C باشد. بسیاری از سرامیک‌ها در این دما به تراکم مطلوب نمی‌رسند. از این رو، تلاش‌های زیادی در جهت کاهش دمای زینتر آن‌ها صورت گرفته مانند: افزودن شیشه‌ای با نقطه ذوب پایین به سرامیک اولیه، افزودن ترکیبات اکسیدی گدازآور به سرامیک، سنتز سرامیک به روش‌های شیمیایی با هدف کاهش اندازه ذرات پودر اولیه سرامیکی و ساخت به روش شیشه-سرامیک [۴]. به‌طور کلی یک زیرپایه دی الکتریک سرامیکی جهت کاربرد در یک مجموعه تهیه شده به روش پخت کم دمای همزمان باید دارای مشخصات زیر باشد [۴]:

دمای زینتر کمتر از ۹۵۰°C: از آنجایی که نقره با نقطه ذوب ۹۶۱°C به‌عنوان الکترود رایج در مجموعه‌های LTCC به کار برده می‌شود، دمای زینتر زیرپایه می‌بایست کمتر از ۹۵۰°C باشد.

نفوذپذیری دی الکتریک کم (ε_r): زیرپایه‌های دی الکتریک غالبا دارای نفوذپذیری دی الکتریک در محدوده ۱۲-۴ می‌باشند، در حالیکه اجزای دی الکتریک دیگری مانند خازن‌ها و رزوناتورها از مقادیر نفوذپذیری بسیار بیشتری برخوردارند. دارا بودن ضرایب نفوذپذیری بالا منجر به تاخیر در زمان پخش سیگنال‌های الکتریکی می‌شود و سرامیک‌های مربوطه جهت کاربرد به‌عنوان زیرپایه دی‌الکتریک مطلوب نخواهند بود.

تلفات دی الکتریک ناچیز: تلفات دی الکتریک ($\tan\delta$) یک مجموعه LTCC در فرکانس‌های ۴۴GHz-۴ عمدتا ناشی از تلفات هدایتی است. فاکتور کیفیت (فاکتور Q) مجموعه‌های LTCC (حاصل ضرب فرکانس رزونانس در $1/\tan\delta$)، بالغ بر ۱۰۰۰GHz است. اکثر موادی که دارای رفتار الکتریکی مناسبی جهت کاربرد در فناوری پخت کم دمای همزمان هستند، از دمای زینتر بالا و نامتناسب با این فرایند برخوردارند. به همین دلیل استفاده از شیشه‌ها و شیشه- سرامیک‌ها در راستای کاهش دمای زینتر مجموعه‌های LTCC مد نظر قرار گرفته است [۴]. از جمله شیشه‌هایی که در فرایند پخت کم دمای همزمان مورد استفاده گسترده قرار گرفته‌اند، می‌توان به شیشه‌های متعلق به خانواده $ZnO\text{-}B_2O_3\text{-}SiO_2$ اشاره کرد که علاوه بر زینترپذیری بسیار مناسب از ویژگی‌های دی الکتریک منطبق با نیازمندی‌های فناوری مربوطه برخوردارند [۷-۵]. تا کنون ساخت کامپوزیت‌های آلومینایی و تیتانیایی حاوی این خانواده از شیشه‌ها مورد بررسی قرار گرفته است که نتایج حاصله موید عملکرد مثبت این شیشه در زینترپذیری و نیز ارائه ویژگی‌های دی الکتریک مطلوب بوده است [۸-۵]. لازم به ذکر است که دی الکتریک‌های مورد استفاده در فرکانس‌های بالا نیازمند ثبات ابعاد، استحکام مکانیکی خوب و اتلاف دی الکتریک پایین هستند [۹]. در این راستا، پژوهش حاضر بر ساخت کامپوزیت‌های مولایت- شیشه ZBS و مشخصه‌یابی کامپوزیت‌های حاصل استوار شد. علت انتخاب مولایت، دارا بودن مشخصات دی‌الکتریک

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

مناسب به‌همراه خواص مکانیکی، شیمیایی و حرارتی بسیار عالی آن بوده است [۱۰].

۲- فعالیت‌های تجربی

برای ساخت کامپوزیت‌های مورد نظر، ابتدا تهیه مولایت و شیشه پایه صورت گرفت. به‌منظور سنتز مولایت، آلومینا (Martinzwerk با خلوص ۹۹/۸٪) و سیلیکا ژل (با خلوص ۹۹٪) بر اساس نسبت استوکیومتری مولایت ($3Al_2O_3.2SiO_2$) با یکدیگر به مدت ۲۴ ساعت در جارمیل مخلوط شدند و مخلوط حاصل پس از خشک کردن، در دمای ۱۴۰۰°C به مدت ۲ ساعت عملیات حرارتی شد. برای تهیه فریت شیشه از ترکیب شیمیایی ۶۵ZnO، $25B_2O_3$ و $10SiO_2$(درصد وزنی) استفاده شد. مواد اولیه برای ساخت فریت شیشه شامل اکسید روی (Merck 8846)، اسید بوریک (Merck 162) و سیلیس ستبران اسیدشویی شده (با خلوص ۹۹/۵٪) بود. آمیز شیشه درون بوته آلومینایی و توسط کوره الکتریکی (Amalgams) در دمای ۱۳۰۰°C به مدت ۲ ساعت ذوب شد. سپس مذاب حاصل با ریخته‌گری در آب سرد به فریت تبدیل شد. فریت به دست آمده به مدت ۴۵ دقیقه توسط هاون عقیق برقی آسیا شد.

برای تعیین توزیع اندازه ذرات مولایت و شیشه سنتز شده و نیز شناسایی فازی مواد سنتز شده و کامپوزیت‌های ساخته شده، به‌ترتیب از پردازشگر توزیع اندازه ذرات (Particle Size Analyzer, Fritsch analysete 22) و پراشگر پرتوهای ایکس (Siemens-D500) با تشعشع تک‌فام $Cu\text{-}k_\alpha$ استفاده شد.

پس از همگن‌سازی مخلوط مواد اولیه جهت ساخت کامپوزیت، شکل‌دهی با استفاده از پرس هیدرولیک دستی تک محوره با فشار ۲۰۰MPa و قالب فولادی استوانه‌ای‌شکل به قطر ۱cm انجام شد. همچنین به منظور تأمین چسبندگی پودر فشرده شده کامپوزیت از ۰/۲٪ کربوکسی متیل سلولز (بر مبنای وزن خشک پودر) استفاده شد.

کامپوزیت‌های مورد بررسی، دارای ۲۰، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ درصد حجمی شیشه بودند. به‌منظور بررسی رفتار تبلور و نیز احتمال واکنش مولایت با شیشه اولیه، از دستگاه آنالیز حرارتی افتراقی (DTA) (Polymer Laboratories, STA-1640) استفاده شد. این آزمون با استفاده از پودر α-Al_2O_3 به‌عنوان مرجع در اتمسفر هوا و با سرعت گرمایش ۱۰°C/min صورت گرفت. زینتر و عملیات حرارتی همزمان نمونه‌های پرس شده در دمای ۹۵۰°C در کوره الکتریکی به مدت ۲ ساعت با سرعت گرمایش ۱۰°C/min انجام شد. برای ارزیابی زینترپذیری، سه ویژگی انقباض خطی، تخلخل باز و چگالی کلی کامپوزیت‌های مورد مطالعه اندازه‌گیری شد. انقباض خطی با استفاده از کولیس با دقت ۰/۰۲ mm محاسبه شد. درصد تخلخل باز و چگالی کلی[2] نیز بر اساس روش ارشمیدس و مبتنی بر استاندارد ASTM C373 اندازه‌گیری شد. برای ارزیابی ریزساختارکامپوزیت بهینه از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM, MIRA\\TESCAN) و مجهز به آنالیز نقطه‌ای و نقشه‌ای ترکیب شیمیایی استفاده شد. با بهره‌گیری از این ارزیابی، بررسی دقیق مورفولوژی و ترکیب شیمیایی فازهای تشکیل شده در کامپوزیت با استفاده از تصاویر گرفته شده با الکترونهای ثانویه و بازگشتی انجام شد. بررسی ریزساختاری

[2] Bulk Density

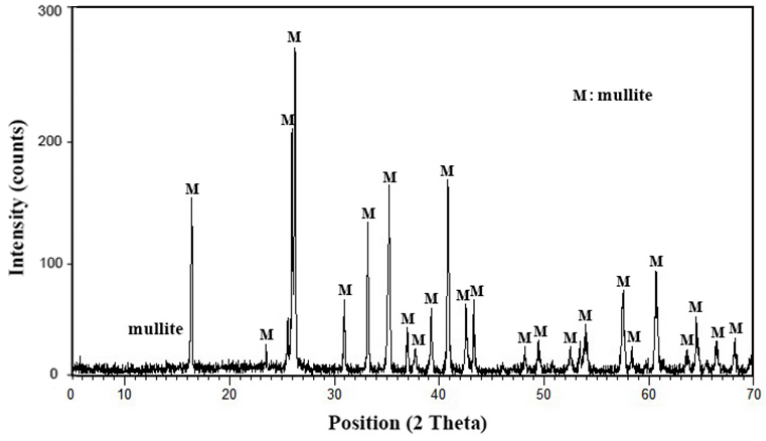
[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

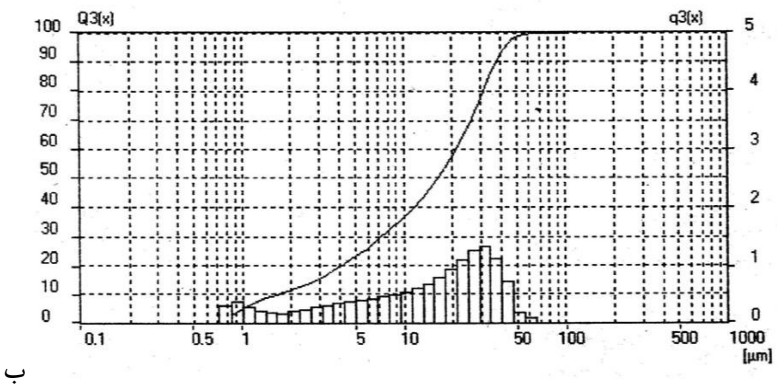
نمونه‌ها پیش و پس از اچ شیمیایی صورت گرفت. سطح نمونه‌های مورد آزمایش قبل از آزمون به زبری ۱μm رسانده شد و اچ شیمیایی توسط محلول ۲/۵٪ حجمی اسید فلوئوریدریک در دو زمان ۱۰ و ۲۰ ثانیه صورت گرفت. سطح نمونه‌ها قبل از آزمون با لایه نازکی از طلا پوشانده شد. برای ارزیابی ویژگی‌های دی الکتریک از نمونه‌های کامپوزیت بهینه استفاده شد. نمونه‌ها به‌صورت استوانه‌هایی با قطر ۸mm و ارتفاع ۵mm بودند. پارامترهای اندازه‌گیری شده شامل نفوذپذیری دی الکتریک (ε_r)، فرکانس رزونانس (f_0)، تلفات دی الکتریک ($\tan\delta$) و فاکتور کیفیت ($Q\times f_0$) بودند که با استفاده از دستگاه پردازشگر شبکه (Network Analyzer) در فرکانس امواج مایکروویو محاسبه شدند.

۳- نتایج و بحث

ابتدا برای ارزیابی فازی و اطمینان از ماهیت ذرات مولایت و شیشه سنتز شده و همچنین بررسی اندازه ذرات آن‌ها، مواد مذکور تحت آزمون پراش پرتوهای ایکس و نیز ارزیابی توزیع اندازه ذرات قرار گرفتند. در شکل ۱، الگوی پراش پرتوهای ایکس به همراه منحنی توزیع اندازه ذرات مولایت سنتز شده مشاهده می‌شود. بر اساس این شکل، تنها فاز قابل شناسایی مولایت با میانگین اندازه ذرات ۱۶ میکرون است.



الف



ب

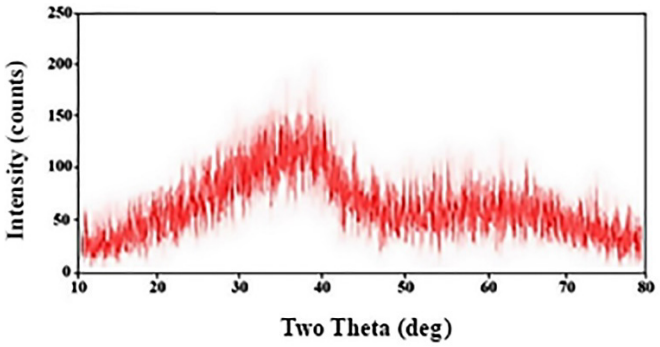
شکل ۱- مولایت سنتز شده در دمای ۱۴۰۰°C به مدت ۲ ساعت:

(الف) الگوی پراش پرتوهای ایکس (ب) منحنی توزیع اندازه ذرات پس از خردایش

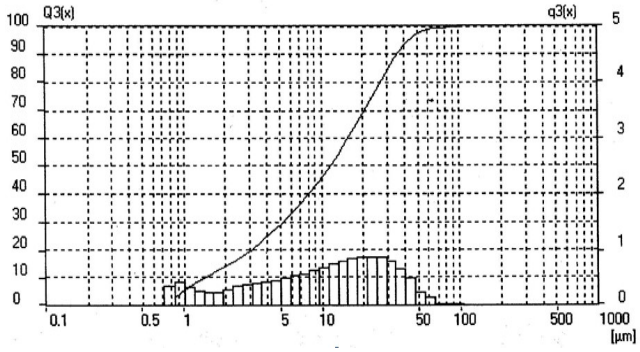
[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

در شکل ۲، الگوی پراش پرتوهای ایکس به همراه منحنی توزیع اندازه ذرات فریت شیشه ساخته شده مشاهده می‌شود. مطابق این شکل، شیشه تهیه شده ماهیتی کاملا آمورف داشته و میانگین اندازه ذرات آن پس از آسیا به ۱۱ میکرون رسیده است. به‌منظور درک رفتار حرارتی شیشه انتخابی، از فریت این شیشه آزمون حرارتی DTA به عمل آمد. گرمانگاشت این آزمون در شکل ۳ مشاهده می‌شود. بر اساس شکل ۳، دمای نقطه نرم‌شوندگی دیلاتومتری این شیشه ۵۹۵°C است و در محدوده دمایی مورد بررسی اثری از تبلور در آن محسوس نیست. لازم به ذکر است به علت سیلان شدید شیشه در حوالی دمای ۷۰۰°C، از اعمال دمای بیشتر در آزمون DTA خودداری شد.



الف



ب

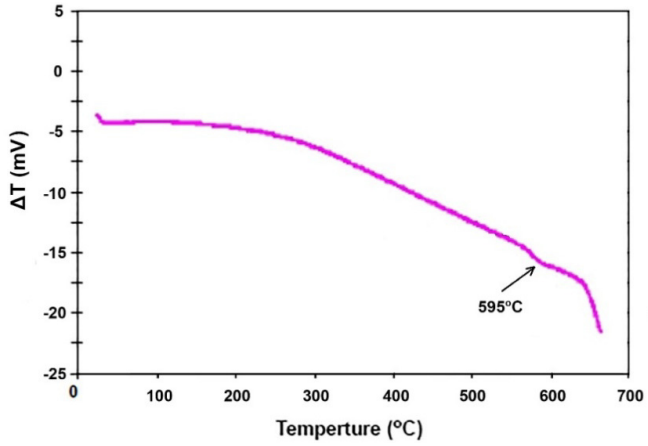
شکل ۲- فریت شیشه تهیه شده در دمای ۱۳۰۰°C:

(الف) الگوی پراش پرتوهای ایکس (ب) منحنی توزیع اندازه ذرات پس از خردایش

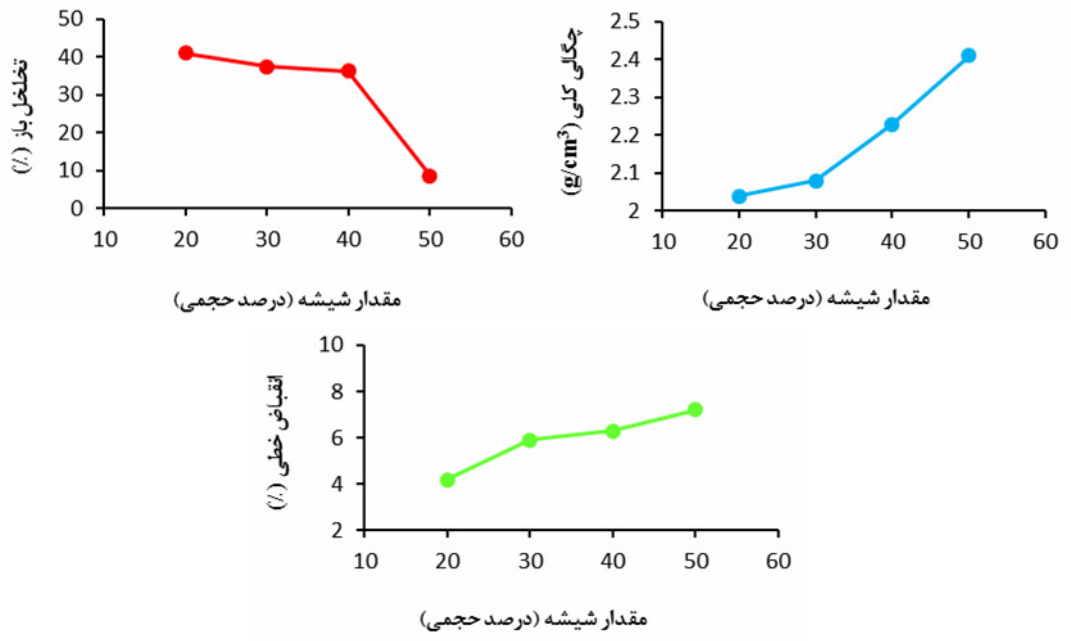
در ادامه کامپوزیت‌های حاوی ۲۰، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ درصد حجمی شیشه پس از شکل‌دهی تحت عملیات حرارتی در دمای ۹۵۰°C به مدت ۲ ساعت قرار گرفتند. انتخاب این دما برای عملیات حرارتی با توجه به حداکثر دمای قابل اعمال در فرایند پخت همزمان کم‌دمای سرامیک‌ها (با توجه به ذوب الکترودهای نقره در دمای ۹۶۰°C) صورت گرفت. در شکل ۴، تغییرات درصد تخلخل باز، چگالی کلی و انقباض خطی این کامپوزیت‌ها پس از عملیات حرارتی ملاحظه می‌شود.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]



شکل ۳- گرمانگاشت آزمون حرارتی DTA از شیشه اولیه



شکل ۴- تغییرات درصد تخلخل باز، چگالی کلی و درصد انقباض خطی کامپوزیت‌های زینتر شده در دمای ۹۵۰°C

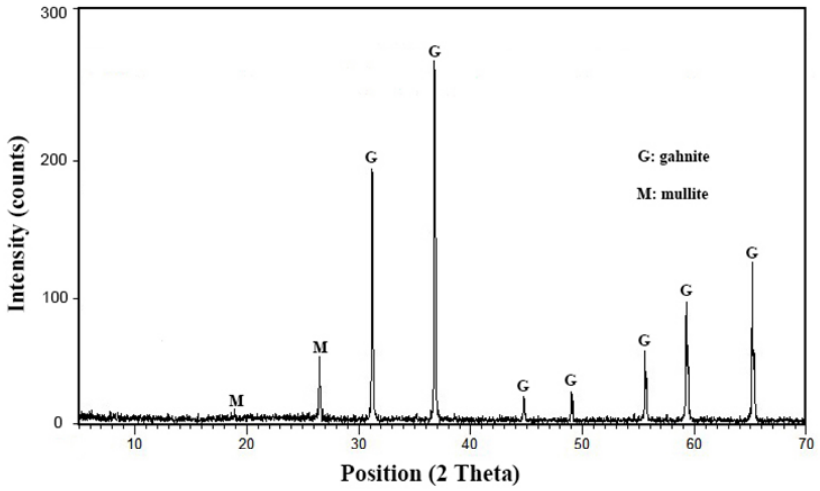
مطابق شکل ۴، با افزایش درصد حجمی فاز شیشه در نمونه‌های کامپوزیت، چگالی کلی و انقباض خطی افزایش و درصد تخلخل باز کاهش می‌یابد. بر اساس این نتایج، افزایش درصد حجمی شیشه موجب افزایش چشمگیر قابلیت زینترپذیری نمونه‌های کامپوزیتی می‌شود. در واقع از آنجایی که در حضور فاز شیشه سازوکار زینتر کامپوزیت‌ها از طریق جریان ناروان این فاز و پر شدن تخلخل‌های نمونه توسط آن صورت می‌گیرد، افزایش مقدار فاز شیشه در کامپوزیت‌های مورد بررسی موجب بهبود پارامترهای اندازه‌گیری شده است به‌طوریکه در بین نمونه‌های مورد مطالعه، کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی فاز شیشه با داشتن انقباض خطی ۷/۲ ٪، چگالی کلی

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

g/cm^3 ۲/۴۱ و ۸/۶ درصد تخلخل باز از بهترین رفتار زینترپذیری برخوردار است. با توجه به نتایج حاصل از ارزیابی رفتار زینترپذیری، کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه ZBS به‌عنوان نمونه بهینه در مرحله عملیات حرارتی انتخاب شد و ادامه بررسی بر این کامپوزیت متمرکز شد.

باید توجه داشت که شیشه‌ها نسبت به مواد بلوری به دلیل ساختار بی‌نظم خود در مواجهه با امواج مایکروویو، این امواج را به شدت جذب و بخش عمده آن را به‌صورت حرارت تلف می‌کنند. لذا فاز شیشه در مقایسه با فاز بلوری عمدتا از ویژگی‌های دی الکتریک ضعیف‌تری برخوردار است [۱۱]. از این رو در مورد کامپوزیت‌های مورد بررسی هرچند افزایش مقدار فاز شیشه بهبود زینترپذیری را در پی داشت، ولی با هدف جلوگیری از تضعیف ویژگی‌های دی الکتریک، از افزودن بیش از ۵۰ درصد حجمی شیشه به کامپوزیت خودداری شد. در شکل ۵ الگوی پراش پرتوهای ایکس از کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه پس از زینتر در دمای $۹۵۰^{o}C$ مشاهده می‌شود.



شکل ۵- الگوی پراش پرتوهای ایکس از کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه (زینتر شده در دمای $۹۵۰^{o}C$)

بر اساس شکل ۵، فاز بلوری اصلی در این نمونه فاز گانیت ($ZnO.Al_2O_3$) و فاز بلوری فرعی مولایت ($3Al_2O_3.SiO_2$) است. با توجه به این موضوع که ترکیب شیشه اولیه فاقد Al_2O_3 است و با توجه به ترکیب شیمیایی فاز گانیت، می‌توان نتیجه گرفت که سازوکار زینتر این کامپوزیت از نوع واکنشی بوده و طی واکنش مولایت با شیشه ZBS موجود در کامپوزیت، فاز گانیت تشکیل شده است. منطقی است که با انجام این واکنش و مصرف فاز مولایت به نفع تشکیل فاز گانیت، مولایت فاز بلوری فرعی در کامپوزیت مذکور باشد.

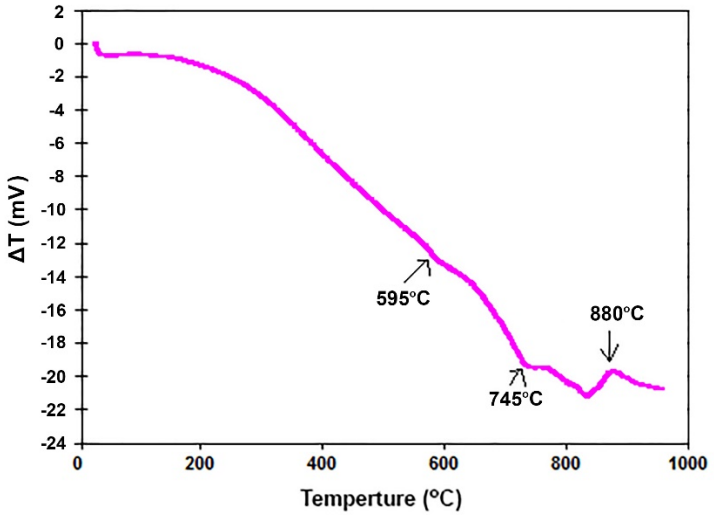
در مقایسه با پژوهش‌های مشابه در این زمینه، بررسی فازی کامپوزیت‌های حاوی شیشه ZBS و فازهای سرامیکی مختلف نشان از تفاوت چشمگیری در سازوکار زینتر دارد. سازوکار زینتر کامپوزیت حاوی تیتانیا و شیشه ZBS از نوع غیر واکنشی گزارش شده است [۶-۵]. این در حالیست که در کامپوزیت‌های تهیه شده از این شیشه و کوارتز [۷]،

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]
[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

آلومینا و کوردیریت [۸]، زینتر از نوع واکنشی بوده به‌طوری‌که در کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی کوارتز- ۵۰ درصد حجمی شیشه مذکور، فاز سیلیکات روی به‌عنوان فاز بلوری غالب در کامپوزیت پس از زینتر در دمای ۹۰۰°C گزارش شده است. همچنین در کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی کوردیریت-۵۰ درصد حجمی شیشه ZBS نیز پس از زینتر در دمای ۸۵۰°C فاز کوردیریت کاملا از بین رفته و فاز گانیت در کامپوزیت متبلور شده است. این نتیجه در مورد کامپوزیت‌های آلومینایی نیز صادق بوده است [۸]. هرچند سازوکار واکنش شیشه ZBS با فازهای سرامیکی مذکور تا کنون به‌روشنی مورد بحث قرار نگرفته است اما با توجه به نتیجه به دست آمده در پژوهش حاضر و پژوهش‌های پیشین [۸-۵]، به نظر می‌رسد فازهای سرامیکی حاوی اکسیدهای آلومینیوم و سیلیسیم بیشتر در معرض واکنش با شیشه بوروسیلیکات روی هستند.

برای تعیین دقیق دمای تشکیل فاز گانیت، از پودر کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه قبل از زینتر، آنالیز حرارتی DTA به عمل آمد که گرمانگاشت مربوطه در شکل ۶ آورده شده است. در این شکل دو دمای مشخصه ۵۹۵ و ۸۸۰°C مشهود است. دمای ۵۹۵°C که پیش از این در تحلیل رفتار حرارتی شیشه انتخابی به آن اشاره شد، نشان‌دهنده دمای نقطه نرم‌شوندگی دیلاتومتری این شیشه و دمای ۸۸۰°C نیز مربوط به پیک گرمازای رخ داده در این دما است.

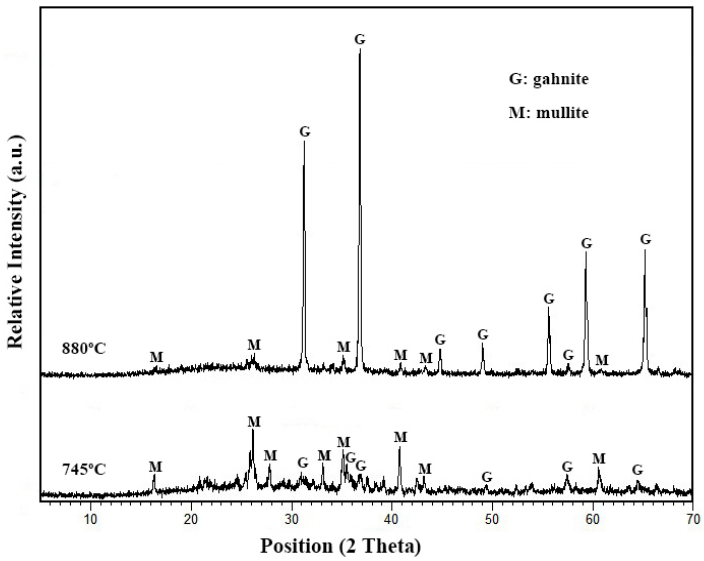
برای تحلیل رفتار حرارتی کامپوزیت در این پیک گرمازا، دمای ۷۴۵°C که اتفاق حرارتی خاصی در آن به نظر نمی‌رسد نیز انتخاب شد و پودر کامپوزیت مورد بررسی در دو دمای ۷۴۵ و ۸۸۰°C جداگانه به مدت ۵ دقیقه عملیات حرارتی شد. در پایان ۵ دقیقه، نمونه‌ها بلافاصله از کوره خارج شده و با هدف تعیین فازهای بلوری قبل از دمای پیک گرمازا و در دمای پیک ۸۸۰°C تحت آزمون پراش پرتوهای ایکس قرار گرفت که نتایج حاصل در شکل ۷ نشان داده شده است.



شکل ۶- گرمانگاشت آزمون حرارتی DTA از کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه (پیش از زینتر)

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]



شکل ۷- الگوهای پراش پرتوهای ایکس از کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه عملیات حرارتی شده در دو دمای ۷۴۵ و ۸۸۰°C

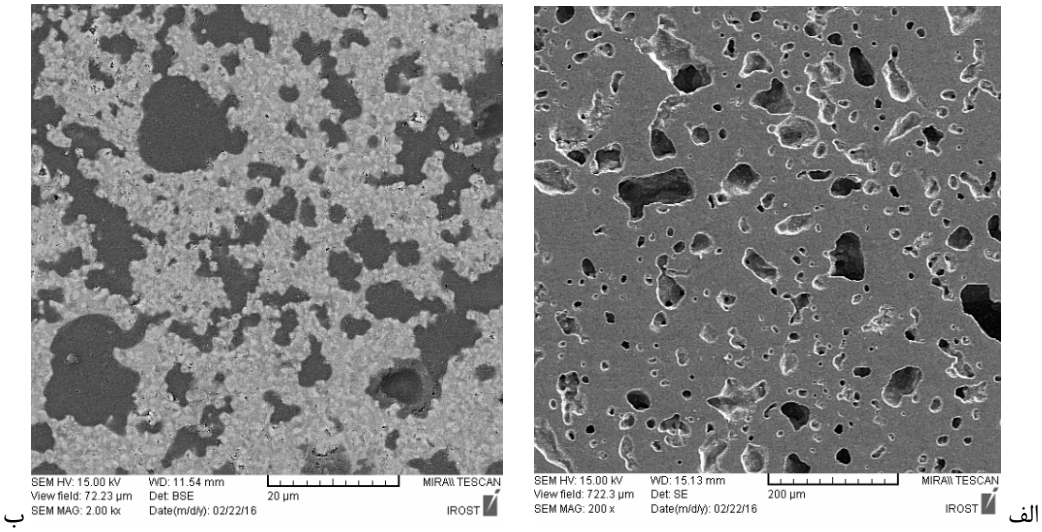
با توجه به الگوهای پراش شکل ۷ می‌توان نتیجه گرفت که در دمای قبل از پیک گرمازا (۷۴۵°C)، فاز اصلی مولایت است. در دمای ۸۸۰°C ، از شدت این فاز شدیدا کاسته شده و شدت فاز گانیت به‌میزان قابل توجهی افزایش یافته است. با توجه به این موضوع می‌توان گفت که در دمای پیک گرمازای ۸۸۰°C تبلور موثر فاز گانیت صورت می‌گیرد. با مقایسه شدت فاز مولایت در الگوهای XRD مربوط به دو دمای ۸۸۰ و ۹۵۰°C دیده می‌شود که در نمونه زینتر شده در دمای ۹۵۰°C، شدت فاز مولایت به میزان قابل ملاحظه‌ای بیشتر است. این موضوع احتمالا ناشی از تبلور مجدد فاز مولایت با افزایش دما و زمان در نتیجه انحلال جزئی گانیت در فاز شیشه غنی از SiO_2 و یا رشد صفحات کریستالوگرافی فاز مولایت در نتیجه افزایش دما است.

در شکل ۸ تصاویر ریزساختار کامپوزیت بهینه اچ نشده پس از زینتر در دمای ۹۵۰°C مشاهده می‌شود. مطابق شکل ۸-الف، در ریزساختار این کامپوزیت حضور تخلخل‌هایی با ابعاد بیشینه ۱۰۰ میکرون مشهود است که به کامل نشدن فرایند زینتر در مرحله عملیات حرارتی باز می‌گردد. بررسی ریزساختار این نمونه با استفاده از الکترون‌های بازگشتی (شکل ۸-ب) موید حضور دو ناحیه روشن و تیره رنگ ناشی از اختلاف موجود در ترکیب شیمیایی این دو ناحیه است.

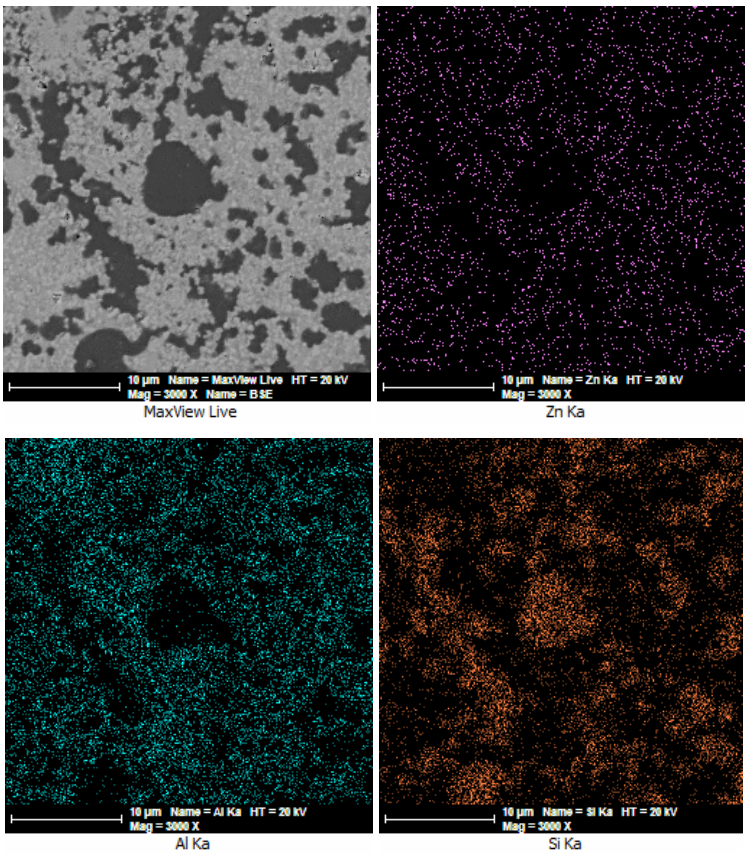
با هدف تعیین ترکیب شیمیایی دو ناحیه تیره و روشن نشان داده شده در شکل ۸-ب، از آنالیز توزیع نقشه‌ای عناصر روی، آلومینیم و سیلیسیم مطابق شکل ۹ استفاده شد. براساس این شکل نواحی روشن در تصویر انتخابی، غنی از روی و آلومینیوم و نواحی تیره‌رنگ غنی از سیلیسیم هستند. با توجه به این نتیجه، به نظر می‌رسد که نواحی روشن و تیره در تصاویر تهیه شده با استفاده از الکترون‌های بازگشتی به‌ترتیب مربوط به فاز گانیت و فاز شیشه به جا مانده از تبلور باشند.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]



شکل ۸- ریزساختار کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه و زینتر شده در دمای ۹۵۰°C (اچ نشده):
(الف) تصویر الکترون‌های ثانویه و (ب) تصویر الکترون‌های بازگشتی از سطح پولیش شده

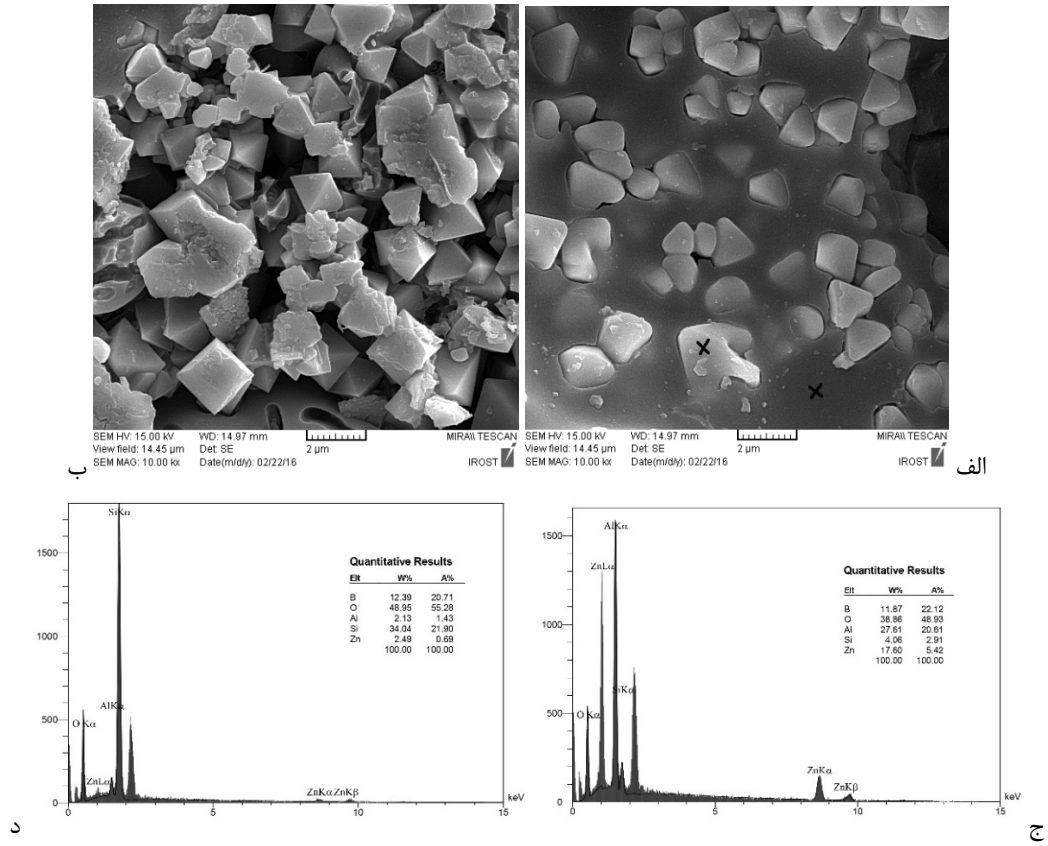


شکل ۹- نقشه توزیع عناصر در ریزساختار کامپوزیت اچ نشده حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه و زینتر شده در دمای ۹۵۰°C

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

در ادامه ریزساختار کامپوزیت بهینه پس از اچ شیمیایی به مدت ۱۰ و ۲۰ ثانیه بررسی شد و برای تعیین ترکیب شیمیایی فازهای مورد بررسی از آنالیز نقطه‌ای ترکیب شیمیایی استفاده شد. نتیجه این بررسی در شکل ۱۰ آورده شده است.



شکل ۱۰- ریزساختار کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه و زینتر شده در دمای ۹۵۰°C پس از اچ شیمیایی:
(الف) به مدت ۱۰ ثانیه (ب) به مدت ۲۰ ثانیه
(ج) آنالیز شیمیایی نقطه‌ای از بلورهای منشوری‌شکل (د) آنالیز شیمیایی نقطه‌ای از فاز زمینه

مطابق شکل ۱۰-الف در ریزساختار کامپوزیت اچ شده به مدت ۱۰ ثانیه، حضور بلورهای منشوری شکل با ابعاد کوچکتر از ۲ میکرون مشهود است که پراکندگی یکنواختی در بستر فاز زمینه دارند. منظور از فاز زمینه فاز خاکستری رنگ مشخص شده (با علامت ضربدر) در شکل ۱۰-ب است که بلورهای منشوری شکل در داخل آن گسترده شده‌اند. همانطور که در این شکل مشاهده می‌شود افزایش زمان اچ شیمیایی به ۲۰ ثانیه، حذف محسوس فاز شیشه و امکان رصد بهتر مورفولوژی فاز بلوری را به دنبال داشته است. با توجه به ارزیابی ترکیب شیمیایی نواحی انتخاب شده با علامت ضربدر در شکل ۱۰-الف، می‌توان دریافت که بلورهای منشوری‌شکل نزدیکی زیادی به ترکیب شیمیایی فاز گانیت دارند درحالیکه فاز زمینه ماهیتی سیلیکاتی دارد. از این رو فاز بلوری منشوری شکل به گانیت

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]
[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

و فاز زمینه به شیشه به جا مانده از تبلور نسبت داده شد. لازم به ذکر است که علیرغم حضور اندک فاز مولایت در کامپوزیت مورد بررسی با استناد به نتایج آزمون XRD، در بررسی ریزساختار اثری از این فاز احتمالا به دلیل مقدار اندک آن یافته نشد. باید توجه داشت هرچند در تهیه کامپوزیت بهینه، از مولایت به میزان ۵۰ درصد حجمی استفاده شده است، ولی بخش عمده مولایت همانطور که پیشتر نیز به آن اشاره شد صرف واکنش با فاز شیشه زمینه و تشکیل فاز گانیت شده است. در جدول ۱، ویژگی‌های دی الکتریک کامپوزیت بهینه زینتر شده در دمای ۹۵۰°Cپس از اندازه‌گیری در فرکانس امواج مایکروویو آورده شده است.

جدول ۱- ویژگی‌های مایکروویو دی الکتریک کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه

نفوذپذیری دی الکتریک	۴/۵
فرکانس تشدید (GHz)	۱۱/۷۶
تلفات دی الکتریک	۰/۰۰۲۵
فاکتور کیفیت (GHz)	۴۷۰۴

از جدول ۱ می‌توان دریافت که فرکانس تشدید کامپوزیت بهینه (۱۱/۷۶ GHz) در محدوده فرکانس امواج مایکروویو (۳۰۰MHz-۳۰۰GHz) قرار دارد. با توجه به اینکه زیرپایه‌های دی الکتریک مورد استفاده در فناوری پخت همزمان سرامیک‌ها از نفوذپذیری دی الکتریک کمتر از ۱۲ برخوردار می‌باشند، نفوذپذیری دی الکتریک کامپوزیت مورد بررسی خللی به لحاظ کاربردی ایجاد نمی‌کند. از آنجایی که دو فاز مولایت و گانیت به‌ترتیب از نفوذپذیری دی‌الکتریک حدود ۶ و ۸ برخوردارند [۱۳-۱۲]، علت کاهش نفوذپذیری دی الکتریک کامپوزیت مذکور را می‌توان به وجود حدود ۸ درصد تخلخل باز در آن نسبت داد. کاهش نفوذپذیری دی الکتریک کامپوزیت نسبت به فازهای موجود در آن به علت افزایش سرعت پخش سیگنال‌های الکتریکی به لحاظ کاربردی مثبت تلقی می‌شود [۴]، هرچند وجود تخلخل در نمونه‌های دی الکتریک کاهش همزمان نفوذپذیری دی الکتریک و افزایش تلفات دی الکتریک را در پی دارد. علیرغم وجود تخلخل در کامپوزیت بهینه، فاکتور کیفیت کامپوزیت مذکور جهت کاربرد در فناوری پخت همزمان کم دما به‌عنوان یک زیرپایه دی الکتریک کفایت می‌کند.

۴- نتیجه‌گیری

نتایج حاصل از پژوهش حاضر را می‌توان به‌صورت زیر خلاصه نمود:

- در بین کامپوزیت‌های ساخته شده، کامپوزیت حاوی ۵۰ درصد حجمی شیشه از بهترین رفتار زینترپذیری در دمای ۹۵۰°C برخوردار است و به‌عنوان کامپوزیت بهینه در این پژوهش معرفی می‌شود.
- سازوکار زینتر کامپوزیت بهینه از نوع واکنشی بوده و فازهای نهایی شامل مولایت و گانیت پراکنده در زمینه شیشه است. فاز گانیت حاصل واکنش مولایت با شیشه ZBS بوده و تشکیل آن به کاهش قابل ملاحظه فاز مولایت در کامپوزیت می‌انجامد.
- بر اساس بررسی ریزساختار کامپوزیت بهینه، گانیت به‌عنوان فاز بلوری غالب در این نمونه دارای مورفولوژی منشوری‌شکل و با ابعاد کوچکتر از ۲ میکرون است. علیرغم شناسایی مولایت در این نمونه به‌عنوان فاز بلوری فرعی، در تصاویر ریزساختار اثری از این فاز به

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

دلیل مقدار کم آن مشاهده نشد.

- با توجه به فرکانس تشدید در محدوده امواج مایکروویو، داشتن نفوذپذیری دی الکتریک کمتر از ۱۲ و فاکتور کیفیت ۴۷۰۴GHz، کامپوزیت بهینه زینتر شده در دمای ۹۵۰°C از ویژگی‌های دی الکتریک قابل قبولی جهت کاربرد به‌عنوان یک زیرپایه دی الکتریک در فرایند پخت همزمان کم‌دمای سرامیک‌ها برخوردار است.

مراجع

[1] Y.J. Choi, J.H. Park, S. Nahm, J.G. Park, "Middle and high permittivity dielectric compositions for low-temperature co-fired ceramics", J. Eur. Ceram. Soc., 27: pp 2017–2024, 2007.

[2] B. Geller, B. Thaler, A. Fathy, M.J. Libertatore, H.D. Chen, G. Ayers, V. Pendrick, Y. Narayan, "LTCC-M: An enabling technology for high performance multilayer RF systems", Microwave J., Vol 42, pp 64-72, 1999.

[3] R. R. Tummala, "Ceramic and glass-ceramic packaging in the 1990s", J. Am. Ceram. Soc.,Vol 74, pp 895-908, 1991.

[4] M. T. Sebastian, H. Jantunen, "Low loss dielectric materials for LTCC applications: a review", Int. Mater. Rev.,Vol 53, pp 57-90, 2008.

[5] K. S. Kim, S. H. Shim, S. Kim, S. O. Yoon, "Low temperature and microwave dielectric properties of TiO_2/ZBS glass composites", Ceram. Int.,Vol 36, pp 1571-1575, 2010.

[6] S. H. Yoon, D.W. Kim, S. Y. Cho, K. S. Hong, "Phase analysis and microwave dielectric properties of LTCC TiO_2 with glass system", J. Eur. Ceram. Soc, Vol 23, pp 2549-2552 2003.

[7] S. Yoon, S. H. Shim, K. S. Kim, J. G. Park, S. Kim, "Low temperature preparation and microwave dielectric properties of ZBS glass- Al_2O_3 composites", Ceram. Int.,Vol 35, pp 1271-1275, 2009.

[8] S. O. Yoon, T. H. Jo, K. S. Kim, Sh. Kim, "Phase formation in the Al_2O_3-, quartz- and cordierite-zinc borosilicate glass composites", Ceram. Int.,Vol 34, pp 2155-2157, 2008.

[۹] درآمدی بر سرامیک‌ها: ساختار و خواص، سعید باغشاهی و سورنا نجم آبادی، ۱۳۸۹، انتشارات زبان امروز.

[۱۰] مولایت و سرامیک‌های مولایتی، تورج عبادزاده، بشیر انیسی و نظیر انیسی، ۱۳۸۷، انتشارات کاوش‌پرداز.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]

[11] L. Navias, R. L. Green, "Dielectric properties of glasses at ultra-high frequencies and their relation to composition", J. Am. Ceram. Soc.,Vol 29, pp 267-276, 1946.

[12] R. R. Tummala, E. J. Rymaszewski, A. G. Klopfenstein, "Microelectronics packaging handbook: Semiconductor packaging", (Massachusetts: Kluwer Academic Publishers, 2004.

[13] A. Rahman, M. T. Islam, M. S. Zulfakar, H. Abdullah, "Synthesis and characterization of gahnite-based microwave dielectric ceramics (MDC) for micro-strip antennas prepared by a sol-gel method", J. Sol-Gel. Sci. Techn.,Vol 74, pp 557-565, 2015.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-22]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1394.4.4.4.3]