

اثر ترکیب بر رفتار تبلور و ویژگی دیالکتریک شیشه سرامیک سیستم CaO-SiO₂-MgO بر پایه فاز ولاستونیت

محبوبه کیانی زیتانی^{*}، محمد رضوانی^{*}

۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی مواد، دانشکده مکانیک، دانشگاه تبریز، تبریز، ایران

۲- دانشیار، گروه مهندسی مواد، دانشکده مکانیک، دانشگاه تبریز، تبریز، ایران

* Mahbube_kiani88@ms.tabrizu.ac.ir

(تاریخ دریافت: ۹۰/۱۰/۰۴، تاریخ پذیرش: ۹۰/۱۲/۰۶)

چکیده

در این تحقیق ترکیب‌های مختلف در سیستم CaO-SiO₂-MgO بر پایه فاز ولاستونیت انتخاب شدند. الگوهای پراش اشعه ایکس نشان دادند که ولاستونیت به عنوان یکی از فاز اصلی در شیشه سرامیک‌های سیتر شده، تشکیل شد. سیترپذیری و تبلور نمونه‌های شیشه سرامیک در دماهای مختلف بررسی شدند. دمای ۸۳۰ °C به عنوان دمای بهینه سیترپذیری انتخاب شد. در نهایت ویژگی‌های دیالکتریک از جمله ϵ_r و $tg\delta$ برای نمونه‌های شیشه سرامیک در دمای ۸۳۰ °C در محدوده فرکانس ۱۲-۸ گیگاهرتز اندازه‌گیری شدند. ثابت دیالکتریک و اتلاف دیالکتریک شیشه سرامیک‌ها به ترتیب در محدوده ۷/۵-۷/۷ و ۰/۰۳۴-۰/۰۲۸ هستند.

واژه‌های کلیدی:

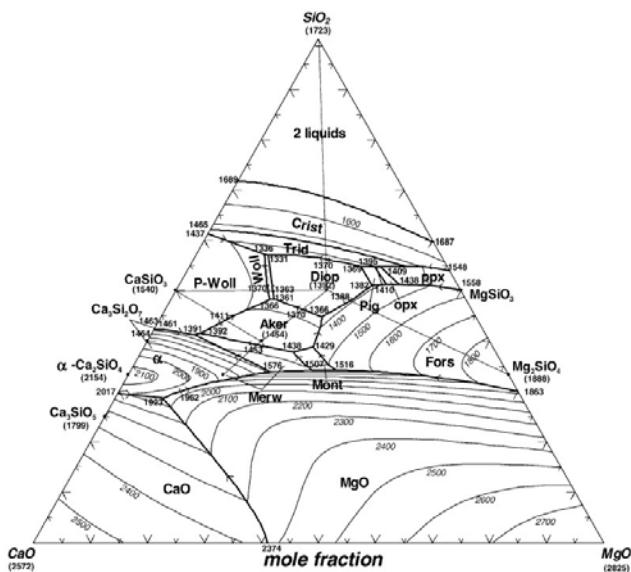
ثابت دیالکتریک، اتلاف دیالکتریک، شیشه سرامیک CaO-SiO₂-MgO بر پایه ولاستونیت و آکرمانیت

۱- مقدمه

شفافیت، استحکام، سختی، مقاومت در برابر سایش، مقاومت شیمیایی و ضریب انبساط حرارتی از طریق کنترل ترکیب، مقدار تبلور، مورفولوژی بلور، اندازه و نسبت ابعادی بلور فراهم می‌کند [۳-۶]. برای کاربردهای وسیع مربوط به ارتباطات بی‌سیم^۱، در انتقالات با فرکانس‌های بالا و حوزه‌های کامپیوتري، بهمنظور دستیابی به زیرلایه‌های LTCC (Low Temperatute Co-fired Ceramic) مناسب برای ارسال سریع سیگنال‌ها، سرامیک‌های دیالکتریک با ضریب دیالکتریک و دمای سیترینگ پایین مورد نیاز است.

شیشه‌ها پس از ذوب، شکل‌دهی و طی عملیات حرارتی تبدیل به شیشه سرامیک می‌شوند. یک یا چند فاز بلورین ممکن است در طول عملیات حرارتی تشکیل شود که ترکیب‌شان به‌طور معمول از شیشه پایه متفاوت است، در نتیجه ترکیب شیشه باقی‌مانده نیز از شیشه پایه متفاوت است [۱-۳]. شیشه سرامیک‌ها معمولاً مشخصه‌های حرارتی، شیمیایی و بیولوژیکی مطلوب و خواص دیالکتریکی برتر از فلزات و پلیمرهای آلی در این حوزه‌ها را از خود نشان می‌دهند [۱]. این سیستم‌های شیشه سرامیکی شرایط بسیار خوبی برای بهبود خواص آن‌ها از قبیل

در سیستم سه جزئی $\text{CaO}-\text{SiO}_2-\text{MgO}$ رفتار تبلور فاز ولاستونیت و ویژگی‌های دی‌الکتریک بررسی شود.



شکل (۱): نمودار سه جزئی $\text{CaO}-\text{SiO}_2-\text{MgO}$

ثابت دی‌الکتریک به صورت عکس ریشه دوم بر سرعت ارسال سیگنال تأثیر می‌گذارد [۹-۶].

شیشه سرامیک $\text{SiO}_2-\text{MgO}-\text{CaO}$ به عنوان سیستم سرامیکی با ثابت دی‌الکتریک پایین و ویژگی‌های دی‌الکتریک خوب شناخته شده است [۱۰]. تبلور ترکیبات شیشه در سیستم سه تایی $\text{SiO}_2-\text{MgO}-\text{CaO}$ ممکن است شامل فازهای بلوری متعدد از قبیل ولاستونیت^۱ ($\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$)، فورسترتیت^۲ ($2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$)، دایوپساید^۳ ($\text{CaO} \cdot \text{MgO} \cdot 2\text{SiO}_2$)، پروتوانتستاتیت^۴ ($\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$) و آکرمانیت^۵ ($2\text{CaO} \cdot \text{MgO} \cdot 2\text{SiO}_2$) باشد. این شیشه سرامیک‌ها به علت مقاومت ویژه و نیز خواص مکانیکی فازهای موجود، می‌توانند برای کاربردهای زیادی مناسب باشند. اما به علت مشکلات جوانه‌زنی، تبلور توده‌ای در این شیشه سرامیک‌ها نسبتاً مشکل است [۲]. ولاستونیت از ثابت دی‌الکتریک پایین، اتصاف دی‌الکتریک پایین و پایداری حرارتی بالایی برخوردار است. از این‌رو در ساخت سرامیک‌ها، مواد پزشکی برای استخوان‌ها و ریشه‌های دندان، عایق‌های فرکانس بالا، مواد پرکننده در رزین‌ها و پلاستیک‌ها ساختمان‌های شهری، تولیدات متالورژی و رنگ استفاده می‌شود. در سال‌های اخیر با افزایش تولیدات ولاستونیت در سرتاسر جهان تقاضا برای این محصول افزایش یافته است [۱۱]. ولاستونیت از نظر ساختاری در دو شکل کاملاً متفاوت وجود دارد. فاز پایدار در دمای بالای 1150°C یک سیلیکات حلقوی است که پزد و لاستونیت^۷ یا α - β -ولاستونیت نامیده می‌شود که از حلقه‌های چهاروجهی $[\text{SiO}_4]$ با سه گوشه مشترک تشکیل می‌شود. زیر دمای 1150°C شامل CaSiO_3 ، زنجیرهایی از چهار وجهه‌های $[\text{SiO}_4]$ است که β -ولاستونیت یا ولاستونیت نامیده می‌شوند [۱۲]. همان‌طور که در شکل (۱) مشاهده می‌شود، به دلیل محدوده باریک فاز ولاستونیت در نمودار سه جزئی $\text{CaO}-\text{SiO}_2-\text{MgO}$ ، در تحقیق حاضر ترکیب شیشه مبنا بر پایه فاز ولاستونیت با توجه به ترکیب استوکیومتری Na_2O ، SiO_2 و CaO (۵۱/۷۲٪ SiO_2 و ۴۸/۲۸٪ CaO) انتخاب شد. به عنوان عامل گداز آور و کاهنده ویسکوزیته اضافه گردید. در نهایت درصدهای مختلف MgO به ترکیب استوکیومتری اضافه شد، تا

۲- مواد و روش تحقیق

جدول (۱) آنالیز شیمیایی ترکیب‌های مختلف را برای تهیه شیشه سرامیک سیستم $\text{SiO}_2-\text{MgO}-\text{CaO}$ بر پایه فاز ولاستونیت نشان می‌دهد.

جدول (۱): نسبت وزنی اکسیدها در ترکیب‌های شیشه

MgO	Na_2O	CaO	SiO_2	اکسید نمونه
۳	۶	۴۸/۲۸	۵۱/۷۲	W.3
۶	۶	۴۸/۲۸	۵۱/۷۲	W.6
۹	۶	۴۸/۲۸	۵۱/۷۲	W.9

با استفاده از مواد اولیه مصرفی شامل سیلیس، کربنات کلسیم و هیدروکسید منزیزم با خلوص بالای ۹۹/۵٪ بیج ترکیب‌های مختلف برای ذوب در بوته‌ی زیرکنی، توزین شدند. ترکیب‌ها در دمای 1400°C با نرخ $10^{\circ}\text{C min}^{-1}$ و زمان نگهداری ۲ ساعت ذوب و در آب سرد کوئنچ شدند. فریت‌های بدست آمده به مدت ۲ ساعت در خشک کن قرار گرفته، سپس با استفاده از هاون برقی به مدت ۴۵ دقیقه آسیاب و به اندازه دانه

میدان یونی بالاتری از Ca^{2+} دارد ($0.0/59 \text{Mg}^{2+}$ و $0.0/36 \text{Ca}^{2+}$) که استحکام پیوند بالاتری را در شبکه شیشه نتیجه می‌دهد [۱۳]. با توجه به دماهای انتقال به شیشه (T_g ، شروع دمای سیترینگ) و دمای تبلور (T_p) مربوط به اطلاعات شکل (۲)، دماهای 790°C ، 830°C ، 870°C و 910°C با فاصله دمایی 40°C و مدت زمان نگهداری ۱ ساعت به عنوان دماهای عملیات حرارتی انتخاب شدند. شکل (۳) الگوهای پراش اشعه ایکس (XRD) فریت‌های شیشه‌ای و نمونه‌های تبلور یافته در دماهای مختلف را نشان می‌دهند.

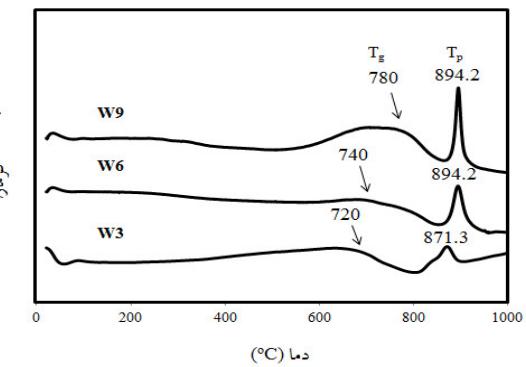
همان طور که در شکل (۳-الف) مشاهده می‌شود، فریت حاصل از ترکیب $W.9$ آمورف است. در دمای 790°C در $2\theta=33/34^\circ$ درجه، پیک سیلیکات سدیم-کلسیم ($\text{Na}_2\text{Ca}_2\text{Si}_3\text{O}_9$) به وجود مشاهده می‌شود. هم‌چنین در $2\theta=30/31^\circ$ درجه، پیک ضعیفی از آکرمانیت ($\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7$) وجود دارد. در دمای 830°C شدت فاز ولاستونیت (CaSiO_3) وجود دارد. در دمای 870°C شدت افزایش یافته و در $2\theta=31/28^\circ$ درجه، پیک آکرمانیت ($\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7$) ظهر می‌یابد. با افزایش دمای 910°C از شدت فاز سیلیکات سدیم-کلسیم و ولاستونیت کاسته شده و فاز آکرمانیت به شدت افزایش می‌یابد، به طوریکه در دمای 910°C تقریباً فاز سیلیکات سدیم-کلسیم وجود ندارد و فاز اول آکرمانیت می‌باشد (البته کاهش شدت فاز ولاستونیت کم است).

شکل (۳-ب) الگوی XRD ترکیب $W.6$ را نشان می‌دهد. در فریت این ترکیب نیز هیچ پیکی مشاهده نمی‌شود. در دمای 790°C پیک ضعیفی از فاز ولاستونیت مشاهده می‌شود. در دمای 830°C فاز ولاستونیت به شدت افزایش می‌یابد. هم‌چنین فازهای سیلیکات سدیم-کلسیم و آکرمانیت تبلور می‌یابند. با افزایش دمای 910°C از شدت فاز سیلیکات سدیم-کلسیم کاسته شده و فاز آکرمانیت به شدت افزایش می‌یابد. در دمای 910°C فاز آکرمانیت با اختلاف کمی از فاز ولاستونیت به عنوان فاز اول می‌باشد، هم‌چنین فاز سیلیکات سدیم-کلسیم از 870°C تا 830°C بین می‌رود. شدت فاز ولاستونیت از دمای 870°C تا 910°C افزایش یافته و در دمای 910°C کاهش می‌یابد.

زیر $63 \mu\text{m}$ میکرومتر تبدیل شدند. به منظور بررسی رفتار تبلور از آنالیز حرارتی افراقتی (Pyris TG/DTA، Perkin Elmer) استفاده شد. نمونه‌های قرصی شکل با قطر 22 mm و ضخامت 4 mm با استفاده از روش پرس با فشار 30 MPa شکل داده شدند. دماهای مختلف عملیات حرارتی با نرخ $10^\circ\text{C min}^{-1}$ و زمان نگهداری ۱ ساعت انتخاب شدند. به منظور بررسی سیترپذیری شیشه سرامیک‌های بدست آمده، دانسیته نسبی (نسبت دانسیته بالک به دانسیته پیکنومتری)، دانسیته بالک، جذب آب و درصد تخلخل نمونه‌ها به روش ارشمیدس و دانسیته پیکنومتری اندازه گیری شد. نوع فازهای بلورین با استفاده از نتایج بدست آمده توسط پراش سنج اشعه ایکس (Siemens D500، Germany) شناسایی شدند. در نهایت ویژگی‌های دیالکتریکی با استفاده از Network Analyzers، 8757D محصول شرکت Agilent اندازه گیری گردید.

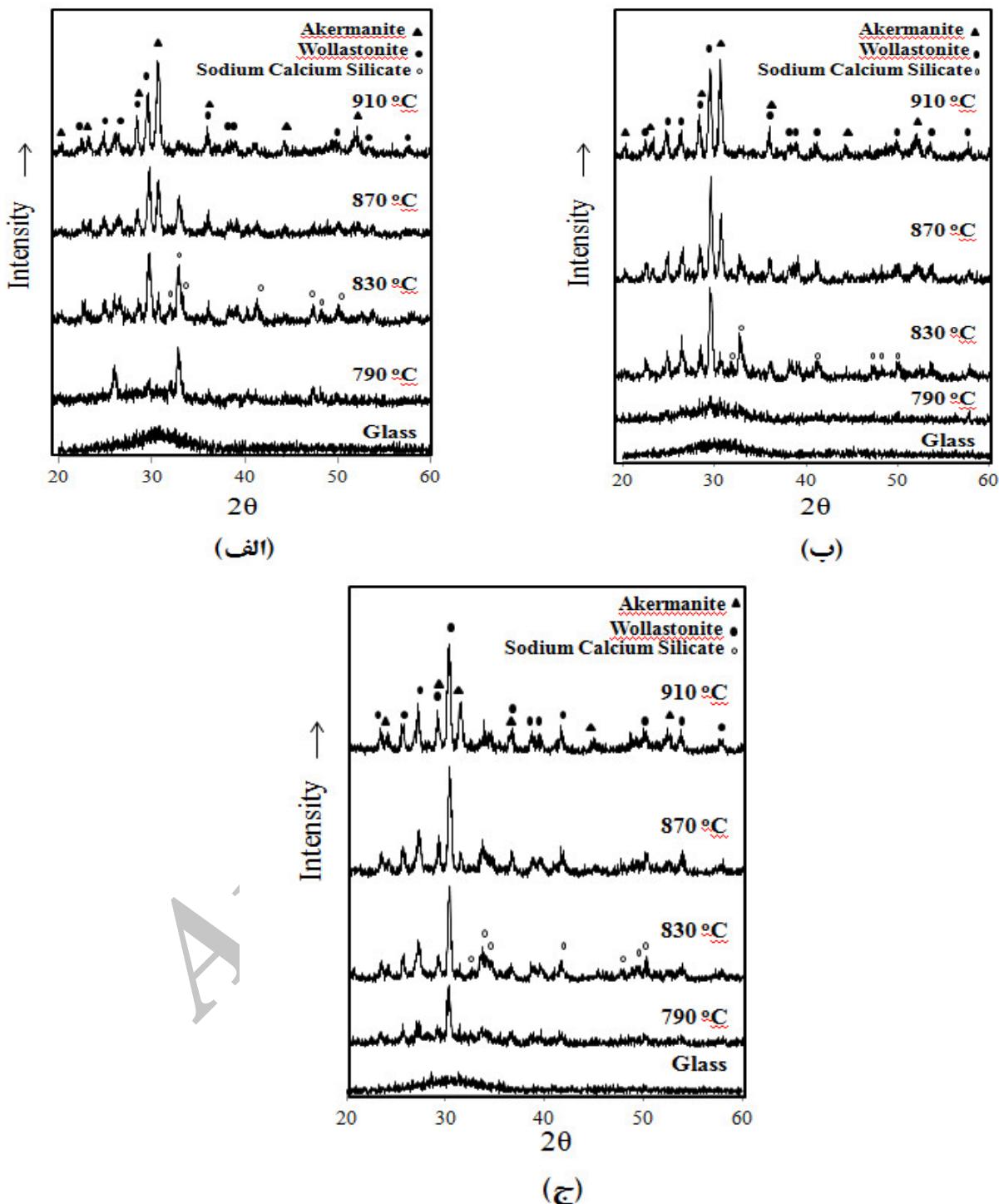
۳- نتایج و بحث

شکل (۲) گرمانگاشت آنالیز DTA ترکیب‌های مختلف شیشه را نشان می‌دهد.



شکل (۲): آنالیز DTA ترکیب‌های مختلف شیشه

براساس اطلاعات شکل (۲) با کاهش مقدار MgO دمای انتقال به شیشه (T_g) و دمای تبلور (T_p) کاهش می‌یابد. به عبارتی افزایش MgO سبب افزایش T_g و کاهش نقل و انتقالات اتمی می‌شود که افزایش ویسکوزیته را نتیجه می‌دهد. Mg^{2+} قدرت

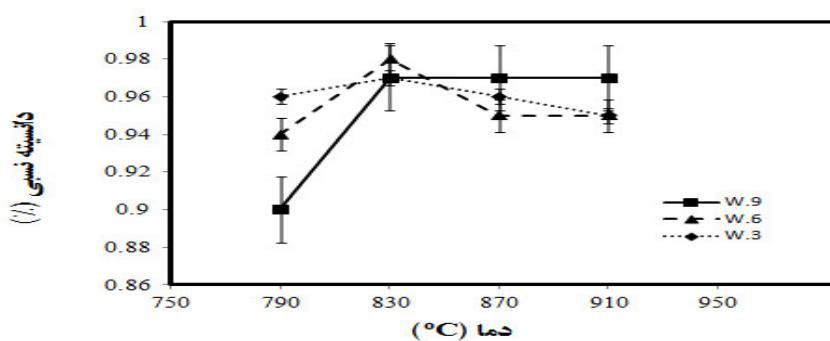


شکل (۳): الگوهای XRD فریت و شیشه‌های عملیات حرارتی شده در دماهای مختلف و زمان یک ساعت: (الف) ترکیب W.9، (ب) ترکیب W.6 و (ج) ترکیب W.3

الگوی XRD فریت و شیشه‌های عملیات حرارتی شده ترکیب هیچ پیک تبلوری نمی‌باشد. در دمای 790°C بیک فاز ولاستونیت مشاهده می‌شود و همزمان فاز سیلیکات در شکل (۳-ج) نشان داده شده است. فریت حاصله دارای

دارد: سیتریننگ جریان ناروان و تبلور [۱۵]. اگرچه در شیشه سرامیک‌های سیتر شده، چگالش و تشکیل فاز بلوری همزمان رخ می‌دهد، اما تبلور، سرعت سیتریننگ را کاهش می‌دهد یا حتی از آن جلوگیری می‌کند [۱۶]. به طوریکه اگر تبلور پیش از چگالش رخ دهد، ویسکوزیته شیشه باقی‌مانده افزایش می‌یابد که باعث کاهش جریان ناروان سیستم می‌شود. در این حالت چگالش از طریق سیتریننگ جریان ناروان به درستی رخ نخواهد داد و منجر به یک بدن مخلخل می‌شود [۱۷-۱۸]. از طرفی مطابق الگوی پراش اشعه ایکس در این نمونه‌ها، پس از دمای 830°C ، شدت پیک‌های فاز آکرمانیت واضح است که با افزایش Na^{+} با Ca^{2+} و Si^{4+} که به مقدار زیادی در ترکیب‌های شیشه وجود دارد برهمکنش کرده و تشکیل فاز سیلیکات سدیم-کلسیم می‌یابد. با افزایش دما، کاهش می‌یابد. احتمالاً در دماهای پایین آن MgO که در شکل (۴) مشاهده می‌شود همراه با افزایش Na^{+} با Ca^{2+} و Si^{4+} که به مقدار زیادی در ترکیب‌های شیشه وجود دارد برهمکنش کرده و تشکیل فاز سیلیکات سدیم-کلسیم می‌دهد. با توجه به ترکیب فاز آکرمانیت واضح است که با افزایش MgO ، آکرمانیت بیشتری بوجود می‌آید. در صد تخلخل باز و جذب آب در مورد شیشه سرامیک‌های سیتر شده، صفر بدست آمد. معیار چگالی نسبی بالاتر، نشان‌دهنده تخلخل بسته کمتر و سیترپذیری بهتر می‌باشد. همان‌طور که در شکل (۴) مشاهده می‌شود همه ترکیب‌ها در دمای 830°C بیشترین دانسیته نسبی را دارند. بعد از این دما سیترپذیری نمونه‌ها کاهش می‌یابد. زمانی که نمونه فریت شکل داده شده تحت عملیات حرارتی قرار می‌گیرد، رقابت بین سیتریننگ و تبلور شروع می‌شود. سطح ویژه و انرژی سطحی پودر در طی سیتریک تمایل به کاهش دارند. برای کاهش انرژی آزاد، شیشه به یک ماده چندبلوری تبدیل می‌شود. بنابراین دو مسیر همزمان برای کاهش انرژی آزاد سیستم وجود دارد:

سدیم-کلسیم و تبلور می‌یابند. در دمای 830°C فاز سیلیکات سدیم-کلسیم ظهرور می‌یابد و فاز ولاستونیت به شدت افزایش می‌یابد. در دمای 870°C فاز آکرمانیت متبلور می‌شود. با افزایش دما تا 910°C شدت فاز سیلیکات سدیم-کلسیم کم شده و فاز آکرمانیت افزایش می‌یابد. فاز ولاستونیت در همه دماها به عنوان فاز اول است. همان‌طور که در الگوهای XRD نمونه‌های شیشه سرامیک مشاهده می‌شود. در همه ترکیب‌ها فاز سیلیکات سدیم-کلسیم تبلور یافته و با افزایش دما، کاهش می‌یابد. احتمالاً در دماهای پایین Na^{+} با Ca^{2+} و Si^{4+} که به مقدار زیادی در ترکیب‌های شیشه وجود دارد برهمکنش کرده و تشکیل فاز سیلیکات سدیم-کلسیم می‌دهد. با توجه به ترکیب فاز آکرمانیت واضح است که با افزایش MgO ، آکرمانیت بیشتری بوجود می‌آید. در صد تخلخل باز و جذب آب در مورد شیشه سرامیک‌های سیتر شده، صفر بدست آمد. معیار چگالی نسبی بالاتر، نشان‌دهنده تخلخل بسته کمتر و سیترپذیری بهتر می‌باشد. همان‌طور که در شکل (۴) مشاهده می‌شود همه ترکیب‌ها در دمای 830°C بیشترین دانسیته نسبی را دارند. بعد از این دما سیترپذیری نمونه‌ها کاهش می‌یابد. زمانی که نمونه فریت شکل داده شده تحت عملیات حرارتی قرار می‌گیرد، رقابت بین سیتریننگ و تبلور شروع می‌شود. سطح ویژه و انرژی سطحی پودر در طی سیتریک تمایل به کاهش دارند. برای کاهش انرژی آزاد، شیشه به یک ماده چندبلوری تبدیل می‌شود. بنابراین دو مسیر همزمان برای کاهش انرژی آزاد سیستم وجود دارد:



شکل (۴): نمودار چگالی نسبی ترکیب‌های شیشه سرامیک

سرامیک W.3 پایین ترین ثابت دیالکتریک را دارد. زیرا بیشترین مقدار فاز ولاستونیت را نسبت به ترکیب‌های دیگر دارد. ولاستونیت دارای ویژگی‌های دیالکتریک بسیار خوبی است. ثابت دیالکتریک ۵ و اتلاف دیالکتریک $10^{-4} \times (1-3)$ [۲۱]. نمونه W.6 بالاترین ثابت دیالکتریک و کمترین اتلاف دیالکتریک را دارد. شاید دلیل این امر بالاترین دانسیته نسبی یا به عبارتی کمترین مقدار تخلخل است. اتلاف دیالکتریک کل، جمع تلفات داخلی و خارجی است. اتلاف دیالکتریک داخلی، اتلاف در بلورهای کامل (بی‌عیب) است، که به ساختار بلور بستگی دارد. اتلاف دیالکتریک داخلی به تقارن بلور، فرکانس اعمالی و دما بستگی دارد. اتلاف خارجی با عیوب در شبکه بلوری مانند ناخالصی‌ها، عیوب ریزساختاری، مرزدانه‌ها، تخلخل میکروترک‌ها و ... ارتباط دارد [۲۲]. بنابراین دانسیته بالاتر (تخلخل کمتر)، اتلاف کمتری را نتیجه می‌دهد.

جدول (۲) ویژگی‌های دیالکتریک نمونه‌های شیشه سرامیک را نشان می‌دهد. ثابت دیالکتریک نمونه‌های شامل فازهای مختلف که به صورت تصادفی قرار گرفته‌اند از رابطه لگاریتمی زیر بررسی می‌شود:

$$\log \varepsilon = \sum v_i \log \varepsilon_i$$

که v_i و ε_i به ترتیب، کسر حجمی و ثابت دیالکتریک فاز (۱) هستند. به طور کلی در سرامیک‌ها، ثابت دیالکتریک به طور مستقیم با پلاریزاسیون و اعداد اتمی و به طور معکوس با استحکام پیوند و دانسیته تغییر می‌کند [۱۹]. ثابت دیالکتریک مواد به تخلخل، اندازه فاز بلوری، جهت و توزیع دانه‌ها و دانسیته بستگی دارد. این ثابت با افزایش تخلخل در مواد کاهش می‌یابد، به علت اینکه ثابت دیالکتریک تخلخل یک است [۱۸ و ۲۰]. همان‌طور که در جدول (۲) مشاهده می‌شود، شیشه

جدول (۲): ویژگی‌های دیالکتریک نمونه‌های شیشه سرامیک

$\tan \delta = \varepsilon'' / \varepsilon'$	\square	$\varepsilon = \varepsilon' + \varepsilon'' j$	ویژگی‌های دیالکتریک نمونه
۰/۰۰۳۴	۷/۲۵	$\varepsilon = ۷/۲۵ - ۰/۰۲۵j$	W.9
۰/۰۰۲۸	۷/۵۰	$\varepsilon = ۷/۵۰ - ۰/۰۲۱j$	W.6
۰/۰۰۳۰	۶/۷۰	$\varepsilon = ۶/۷۰ - ۰/۰۲۰j$	W.3

۵- مراجع

- [1] W.Holand and G. Beal, "Glass Ceramic Technology ", p. 15-25, The American Ceramic Society, New York, 2002.
- [2] P. Alizadeh and V.K. Marghussian, " The Effect of Compositional Changes on the Crystallization Behavior and Mechanical Properties of Diopside-Wollastonite Glass-Ceramics in the $\text{SiO}_2\text{-CaO-MgO}$ (NaO_2) System ", Journal of the European Ceramic Society, Vol. 20, pp. 765-773, 2000.
- [3] M. N. Rahaman, " Ceramic Processing and Sintering ", p. 27, CRC Press, New York ,2003.
- [4] D.U. Tulyaganov et al," Synthesis of Glass-Ceramics in the CaO-MgO-SiO_2 System with B_2O_3 , P_2O_5 , Na_2O and

۶- نتیجه‌گیری

در این تحقیق نمونه‌های شیشه سرامیک بر پایه فاز ولاستونیت آماده سازی شد. بیشترین فاز ولاستونیت در ترکیب W.3 بلور یافت. دمای 830°C دمای بهینه سینترپذیری انتخاب گردید. ترکیب W.3 با دانسیته نسبی ۰/۹۷، ثابت دیالکتریک ۶/۷۰ و اتلاف دیالکتریک $0/003$ به عنوان بهترین ترکیب با ویژگی‌های دیالکتریک و سینترپذیری مناسب انتخاب گردید.

- Crystallization Porosity", Journal of the European Ceramic Society, Vol. 26, pp. 2511-2517, 2006.
- [16] S. Banijamali et al, "Crystallization and Sintering Characteristics of CaO-Al₂O₃-SiO₂ Glasses in the Presence of TiO₂, CaF₂ and ZrO₂", *Thermochimica Acta*, Vol. 488, pp. 60-65, 2009.
- [17] S. Banijamali et al, "Sinterability, Crystallization and Properties of Glass-Ceramic Tiles belonging to CaF₂-CaO-MgO-Al₂O₃-SiO₂ System", *Ceramics Internatinal*, Vol. 33, pp. 1557-1561, 2007.
- [18] Y. Shimada et al, "Low Dielectric Constant Multilayer Glass-Ceramic Substrate with Ag-Pd Wiring for VLSI Package", *IEEE Transactions On Components, Hybrids and Manufacturing Technology*, Vol. 11[1], pp. 163-170, 1988.
- [19] M. S. Jogad, "Dielectric Measurement on Magnesium Aluminum Silicate Glass-Ceramics Prepared by Different Routes", *Materials Letters*, Vol. 57, pp. 619-62, 2002.
- [20] M. Mohammadi et al, "Effedt of Frit Size on Sintering, Crystallization and Electrical Properties of Wollastonite Glass-Ceramic", *Journal of Non-Crystalline Solids*, Vol. 37, pp. 150-156, 2011.
- [21] M. T. Sebastian, "Dielectric Materials for Wireless Communication", p. 1 and 11-13, Elsevier, Oxford, UK, 2008.
- CaF₂ Additives, Journal of the European Ceramic Society, Vol. 26, pp. 1463-1471, 2006.
- [5] F.M. Bertan et al, "Extruded ZrSiO₄ Particulate-Reinforced LZSA Glass-Ceramics Matrix Composite", *Journal of Materials Proseccing Technolory*, Vol. 29, pp. 1134-1142, 2009.
- [6] J. Kim et al, "Thermal and Dielectric Properties of Glass-Ceramics Sintered Based on Diopside and Anorthite Composition", *J Electroceram*, Vol. 23, pp. 209-213, 2009.
- [7] R. Wang et al, "CaF₂-AlF₃-SiO₂ Glass-Ceramic with Low Dielectric Constant for LTCC Application", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 490, pp. 204-207, 2010.
- [8] K. Kata and Y. Shimada, " Low Dielectric Constant Glass-Ceramic Composite Controled Isolated Porosity, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 100[4], pp. 570-576, 1992.
- [9] Ch. R. Chang and J. H. Jean, " Crystallization Kinetics and Mechanism of Low-Dielectric, Low-Temperature, Cofirable CaO-B₂O₃-SiO₂ Glass-Ceramics, *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 82 [7], pp. 1725-32, 1999.
- [10] H. P. Wang, "Synthesis and Microwave Dielectric Properties of CaO-MgO-SiO₂ Submicron Powders Doped with Li₂O-Bi₂O₃ by sol-gel Method", *Materials Research Bulletin*, Vol. 44, pp. 619-622, 2009.
- [11] H. Ming et al, " Characterization and Analysis of CaO-SiO₂-B₂O₃ Ternary Syatem Ceramic", *Journal os Materials Science: Materials in Electronics*, Vol. 22 [4], pp. 389-393, 2010.
- [12] K. F. Hesse, " Refinement of the Crystal Structure of Wollastonite-2M (Parawollastonite)", *Zeitschrift Fur Kristallographie*, Vol. 168, pp. 93-98, 1984.
- [13] Milos B.Volf, " Chemical Approach to Glass", p. 118-123,234,246, Elsevier, New York, 1984.
- [14] M.O.Prdo et al, "On The Sinterability Of Crystallizing Glass Powders", *Journal of Non-Crystalline Solids*, Vol. 354, pp. 4589-4597, 2008.
- [15] A. Karamanov and M. Peliono, "Sinter-Crystallization in the Diopside-Albite System part I. Formation of Induced

۶- پی نوشت

- 1- Wireless
- 2- Wollastonite
- 3- Forsterite
- 4- Diopside
- 5- Protoenstatite
- 6- Akermanite
- 7- Pseudowollastonite