



Makale / Research Paper

Mikronaltı Boyutlu Başlangıç Tozuyla Üretilen Y_2O_3 Katkılı Si_3N_4 Seramiklerde Sinterleme Proses Çevriminin Termal İletkenliğe Etkisi

Pınar UYAN

Bilecik Şeyh Edebali Üniversitesi Meslek Yüksek Okulu Metalurji Programı, 11210, Bilecik /TÜRKİYE
Biyoteknoloji Uygulama ve Araştırma Merkezi, Bilecik Şeyh Edebali Üniversitesi, Bilecik, TÜRKİYE

pinar.uyan@bilecik.edu.tr

Received/Geliş: 19.06.2020

Accepted/Kabul: 08.08.2020

Öz: Elektronik cihazlarda ısı artışı kontrol ihtiyacı, yüksek termal iletkenlikli altlık malzemelerin üretilmesinin temel nedenini oluşturmaktadır. Si_3N_4 seramiklerde termal iletkenliği etkileyen parametrelerinin kontrolü ile bu endüstriyel uygulamalar için uygun özellikte malzemeler geliştirilebilir. Si_3N_4 seramiklerin termal iletkenliğine etki eden, yoğunluk ve tane sınır fazı gibi iki önemli parametre, sinterleme ilaveleri ve tekniklerine bağlıdır. Sinterlemede, uygulanan gaz maruz kalma süresi ve sinterleme sonrası uygulanan soğutma çevrimi, faz kristalizasyonunu etkileyen faktörler olup, sinterleme sonrası mikroyapıda oluşan fazların türü miktarı ve dağılımı termal iletkenliği etkiler. Bu çalışmada, Si_3N_4 başlangıç tozuna ($<1 \mu m$), Y_2O_3 ilave edilerek gaz basınçlı sinterleme (GPS) ile üretilmiş Si_3N_4 seramiklerin, sinterleme sonrası farklı soğutma çevrimlerinin, mikroyapı ve termal iletkenliğe etkisi araştırılmıştır. Termal iletkenlik, yavaş soğutma ile 42,69 W/m.K, hızlı soğutma ile 44,18 W/m.K elde edilmiştir. Yavaş soğutma ile yoğunluk azalmış, açık porozite artmış, termal iletkenlik $\sim 3,5$ oranında azalmıştır.

Anahtar Kelimeler: Termal iletkenlik, GPS, Karakterizasyon

The Effect of Sintering Process Cycle on Thermal Conductivity in Y_2O_3 Additive Si_3N_4 Ceramics Produced with Submicron Size Starting Powder

Abstract: The need for control of temperature rise in electronic devices is a fundamental cause of the production of high thermal conductivity substrate materials. By controlling the parameters affecting thermal conductivity Si_3N_4 ceramics, materials with suitable properties for the industrial applications can be developed. Two important parameters affecting the thermal conductivity of Si_3N_4 ceramics such as density and grain boundary phase depend on sintering additives and techniques. In the sintering, the gas application time and the sintering cooling cycle are the factors affecting the phase crystallization. The amount and distribution of the phases formed in the microstructure after sintering affect the thermal conductivity. In this study, the effect on microstructure and thermal conductivity of different cooling cycles of Si_3N_4 ceramics gas pressure sintered with Y_2O_3 addition to Si_3N_4 starting powder ($<1 \mu m$) was investigated. Thermal conductivity was 42.69 W/m.K with slow cooling and 44.18 W/m.K with rapid cooling. With slow cooling, density decreased, open porosity increased, thermal conductivity decreased by $\sim 3.5\%$ ratio

Keywords: Thermal conductivity, GPS, Characterization

1. Giriş

Termal iletkenlik; malzemelerin çalışma sıcaklık aralığını belirlemede, yüksek sıcaklık uygulamalarında malzemelerin performansı hakkında bilgi edinmede önemli bir özelliktir. Bu

Bu makaleye atıf yapmak için

Uyan P., "Mikronaltı Boyutlu Başlangıç Tozuyla Üretilen Y_2O_3 Katkılı Si_3N_4 Seramiklerde Sinterleme Proses Çevriminin Termal İletkenliğe Etkisi" El-Cezeri Fen ve Mühendislik Dergisi 2020, 7(3); 1332-1342.

How to cite this article

Uyan P., "The Effect of Sintering Process Cycle on Thermal Conductivity in Y_2O_3 Additive Si_3N_4 Ceramics Produced with Submicron Size Starting Powder" El-Cezeri Journal of Science and Engineering, 2020, 7(3); 1332-1342.

ORCID: 0000-0003-0411-9773

nedenle malzemelerin termal iletkenliğini anlamak ve kontrol etmek önemlidir [1-4]. Seramiklerde, enerjinin daha çok fonon ile iletilmesi nedeniyle termal iletkenlik düşüktür [5]. Si_3N_4 seramikler ise, sahip oldukları yüksek termal iletkenlik, elektriksel direnç, kırılma tokluğu ve mukavemet özelliklerinden dolayı ileri teknoloji seramikleri sınıfında önemli bir yere sahiptir [6]. $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 'ün teorik termal iletkenliği oda sıcaklığında 200-320 W/mK olup [7], deneysel çalışmalarla, Si_3N_4 'ün termal iletkenliği 100-180 W/mK değerlerinde elde edilebilmiştir [8-11]. Artan bu, termal iletkenlik değerleri, Si_3N_4 'ün elektronik cihazlarda ısı alıcılar ve entegre devreler için altlık malzemesi olarak kullanımları gibi teknolojik uygulamalarının önünü açmıştır.

Si_3N_4 güçlü kovalent bağ yapılı olduğundan dolayı, sıvı faz sinterleme tekniği ile üretilir. Sinterleme sırasında oksit ilavelerin, oluşturduğu düşük ötektığe sahip sıvı fazın hangi sıcaklıklarda oluşacağı, viskozitesi ve Si_3N_4 çözünürlüğü önemlidir [12,13]. Nadir toprak oksitleri toprak elementin iyonik yarıçapı azaldıkça, $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 'ün tane büyümesi artar, $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ tanelerin latis oksijen miktarı azalır ve bu nedenle termal iletkenlik artar. Y_2O_3 diğer nadir toprak oksitlerle kıyaslandığında yüksek termal iletkenlikli Si_3N_4 seramik üretmek için en uygun ilavelerden olup, çalışmada bu nedenle kullanılmıştır [14].

2. Literatür Özeti

Yüksek termal iletkenliğe sahip silisyum nitrür seramikler ve kullanım alanları ile ilgili çalışmalar bulunmaktadır [8-11]. Ancak bu çalışmalarda sinterlemede soğutma çevriminin etkisi araştırılmamıştır. Si_3N_4 seramiklerin termal iletkenliğini arttırmak için yoğunluğun artırılması ve tane sınır fazı miktarının azaltılması önemlidir. Bu parametreler, sinterleme ilaveleri ve sinterleme tekniklerine bağlıdır. Y_2O_3 , $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ seramiklerin termal iletkenliğini arttırmak için uygun oksit ilaveleridir [15]. Sinterleme ilaveleri tane sınırlarında kaldığı takdirde, termal iletkenliğin düşmesine neden olur. Sinterleme yöntemlerinden biri olan gaz basınçlı sinterlemede (GPS) uygulanan yüksek N_2 basıncı, Si_3N_4 'de dekompozisyonu engeller ve böylece yüksek sıcaklıklara çıkmaya imkân verir. Sinterleme sıcaklığının artmasıyla, ince matris yapı içinde büyük çubuksu tanelerin oluşumu sağlanır. Bunun sonucunda da termal iletkenlik artar [16]. GPS ile üretilen Si_3N_4 seramiklerde, azot gazına maruz kalma süresine göre, oluşan taneler arası fazların değiştiği bulunmuştur. Buna ilaveten sinterleme sonrası soğutma çevrimi de taneler arası faz oluşumunda önemli bir etkiye sahiptir [17]. Mikroyapıdaki fazların türü miktarı ve dağılımı termal iletkenliği etkilediğinden [18-21], incelenmesi önemlidir. Sinterlemede farklı soğutma hızlarının termal difüzyon hızına etkisinin incelendiği tek bir çalışmada, bu çalışmadan farklı faz oranlarına sahip (%10 β) ve $1\mu\text{m}$ 'den büyük tane boyutlu başlangıç tozları kullanılmıştır [22]. Bu çalışma kapsamında ise, daha yüksek iletkenlik elde etmek amacıyla numuneler, ince tane boyutuna sahip ($<1\mu\text{m}$) ve %2 β içeren başlangıç Si_3N_4 tozuna Y_2O_3 ilave edilerek basınçlı sinterleme yöntemi ile üretilmiştir. Sinterlemede farklı soğutma çevrimleri uygulanmış numunelere ayrıntılı içyapı analizleri yapılarak, sinterleme soğutma çevriminin termal iletkenliğe etkisi incelenmiştir.

3. Materyal ve Metot

3.1. Kullanılan Başlangıç Si_3N_4 Tozu ve Oksit İlaveler

Çalışmada, reaktifliği yüksek UBE Si_3N_4 başlangıç tozu ($<1\mu\text{m}$, %2 β) kullanılmıştır. (Tablo1). Sinterleme ilavesi olarak MgO , Y_2O_3 ve SiO_2 tozları kullanılmıştır. Bu tozların özellikleri Tablo 2'de verilmiştir.

Tablo 1. Çalışmada kullanılan başlangıç Si_3N_4 tozu

Toz	α/β Oranı	Tane boyutu (μm)	Üretici Firma	Üretim Metodu
UBE Si_3N_4	98/2	0,55	UBE Industries,Ltd.,Tokyo, Japonya	Di-imide % 1,4 O

Tablo 2. Sinterleme ilavesi olarak kullanılan tozların özellikleri

Toz	Üretici Firma	Kompozisyon(Ağ)
Mg(OH) ₂		99,9
SiO ₂	Sigma Aldrich Chemical Co.	99,9
Y ₂ O ₃		99,9

3.2. Metot

Toz karışımları izopropil alkol kullanılarak aksel deęirmende (Fritsch-Pulverisette 5) dönme hızı 300 dev/dak olmak üzere 1.5 saat öğütme işlemine tabi tutulmuşlardır. Öğütme sonrası çamur, alkolden arındırılması amacıyla, sıcaklık ve dönme hızı kontrol edilerek, döner kurutucuda (Heidolph 4001) kurutulmuştur. Kurutularak toz haline getirilen karışımlar, elekten geçirilmiş ve şekillendirmeye hazır hale getirilmişlerdir. Üretim ve karakterizasyon çalışmalarını özetleyen iş akış şeması Şekil 1’de verilmiştir.

Hazırlanan tozlar önce 25 MPa basınçta tek eksenli el presi ile (Alfa marka) şekillendirilmiş, bu ilk şekillendirilmeden sonra, soğuk izostatik pres (CIP-Stansted Fluid Power marka FPG2568/2569) ile 300 MPa basınç uygulanmıştır. Sinterleme işlemleri, gaz basınçlı sinterleme fırınında (KCE-FPW 100/150-2200-25), 1775 °C sıcaklıkta, 5 bar azot gaz basıncı altında, 2 saat gerçekleştirilmiştir. Sinterleme prosesi, Şekil 2’de şematik olarak gösterilmiştir. Tüm sıcaklık artış basamaklarında ısıtma hızı 10°C/dak tutulmuştur. Hızlı soğutma çevriminde, numuneler 70°C/dak hızla soğutulmuş, yavaş soğutma çevriminde ise, 1775-1700°C arasında 10°C/dak, 1700-1400°C arasında 5°C/dak, 1400°C-RT arasında 70°C/dak hızla olmak üzere 3 aşamalı soğutma çevrimi uygulanmıştır.

3.3. Karakterizasyon Çalışmaları

Fazları tespit etmek için X-ışını difraksiyon (XRD) teknięi kullanılmıştır. X-ışınları difraktometresi (Panalytical Empyrean) ile çekimler yapılmıştır. α ve β - Si₃N₄ fazlarının yaklaşık oranı, α - Si₃N₄ ve β -Si₃N₄ için sırasıyla (102)-(210) ve (101)-(210) düzlemlerinden elde edilen pik şiddetleri kullanılarak Eşitlik (2) yardımıyla hesaplanmıştır [23].

$$I_{\beta}/(I_{\alpha}+I_{\beta})=1/(1+K[(1/W_{\beta})-1]) \quad (2)$$

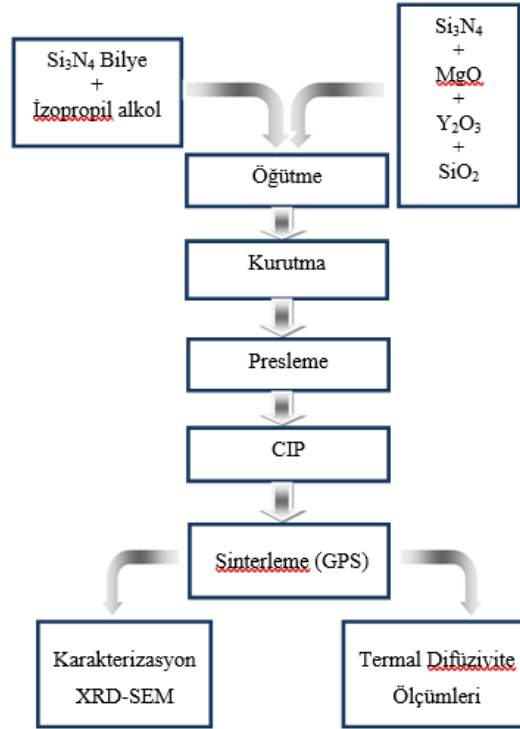
Eşitlikte I_{α} ve I_{β} , sırasıyla α ve β -Si₃N₄ fazları pik şiddetleridir. W_{β} , β -Si₃N₄ ağırlık kesridir, K, orantı sabitidir. Bu sabit, $\beta(101)$ - $\alpha(102)$ ve $\beta(210)$ - $\alpha(210)$ kırınimleri için sırasıyla 0,518 ve 0,544’dir.

Yığınsal yoğunluk ölçümü Arşimet, suyla yer deęiştirme, prensibine göre yapılmıştır (ASTM-C373). Numuneler, kuru ağırlıkları (W1) tartıldıktan sonra, gözeneklerin içinde kalmış havanın uzaklaştırılması için saf suda 2,5 saat kaynatılıp, soğutulduktan sonra, askıdaki (W2) ve sıvı sızdırılmış ağırlıkları (W3) ölçülmüş, Eşitlik 3’e göre yığınsal yoğunlukları hesaplanmıştır [24].

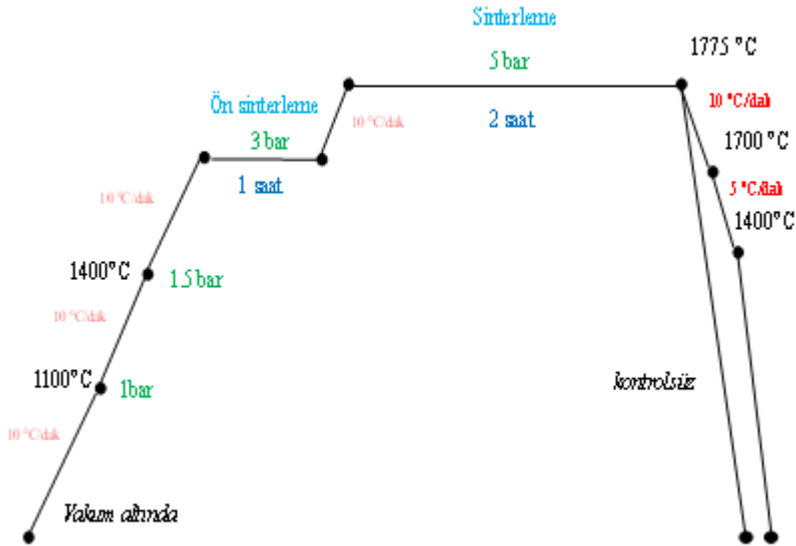
$$Yığınsal\ Yoğunluk=[W1/(W3-W2)] \quad (3)$$

Başlangıç Si₃N₄ tozlarının mikroyapı incelemeleri, SEM (Zeiss Supra 50 VP) geri yansıyan elektron (BSE), sinterlenmiş numunelerin mikroyapı incelemeleri, SEM (Zeiss Supra 40 VP FEG-SEM) ikincil elektron görüntü modunda (SE) yapılmıştır.

Termal difüzivite ölçümleri (ASTM E1461-01), lazer mikro flaş cihazı (Netzsch LFA-457) kullanılarak gerçekleştirilmiştir [25]. Termal difüzivite grafiklerinde her bir nokta, ortalama termal difüzivite deęerleridir. Cp deęeri, daha önceki çalışmalar referans alınıp, 0,7 J/g.K alınmıştır [26].



Şekil 1. Deneysel iş akış diyagramı

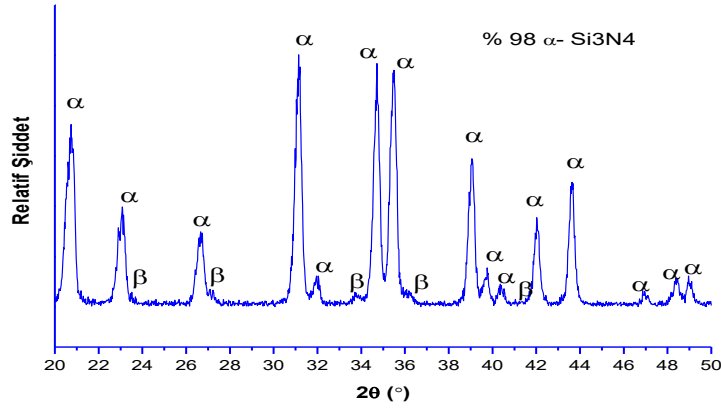


Şekil 2. Sinterleme prosesinin şematik gösterimi

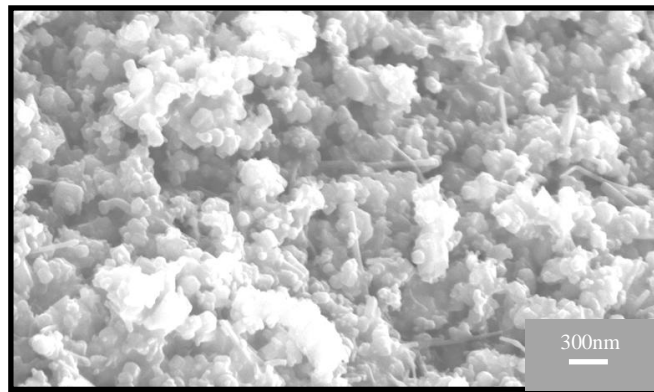
4. Bulgular ve Tartışma

4.1. Başlangıç Tozlarının Karakterizasyonu

UBE Si_3N_4 tozunun XRD paterni, Şekil 3'de verilmiştir. Başlangıç Si_3N_4 tozunun tane şekli, tozun çözünürlüğünü ve sinterlemeyi etkiler. Morfoloji hakkında bilgi sahibi olabilmek için Si_3N_4 tozunun farklı büyütmeyle alınmış ikincil elektron SEM görüntüleri, Şekil 4'te verilmiştir. Mikroyapı görüntülerinde, tozun küresel yapıya sahip olduğu görülmektedir (Şekil 4).



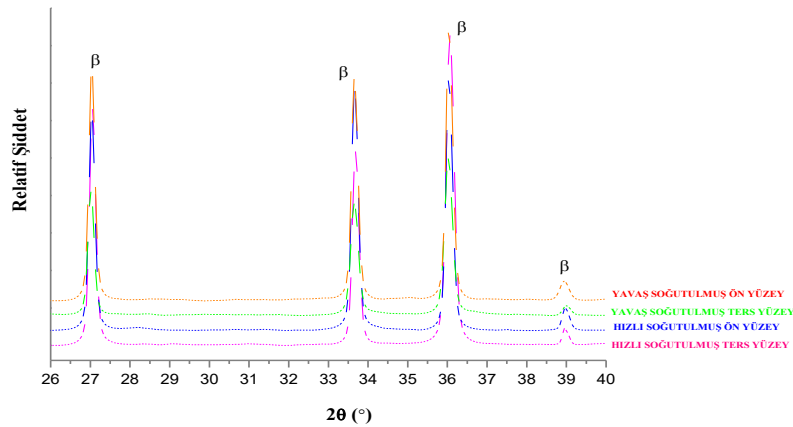
Şekil 3. Başlangıç UBE Si_3N_4 tozunun XRD paterni



Şekil 4. UBE Si_3N_4 tozunun ikincil elektron SEM görüntüsü (10 KX)

4.2. Yoğunluk ve Faz Analizi Sonuçları

Sinterleme sonrası hızlı ve yavaş soğutma çevrimi uygulanmış numunelerin XRD paternleri Şekil 5’de, yoğunluk ve faz analizi sonuçları ise Tablo 3’de verilmiştir. 1775°C’de, 5 bar azot gaz basıncı altında 2 saat sinterlenmiş, yavaş ve hızlı soğutulmuş numunelerin hem ön hem arka yüzeylerinin XRD paternleri incelendiğinde, ikincil kristalin fazların oluşmadığı gözlenmiştir. Bu sonuçlardan yavaş soğutmanın faz kristalizasyonuna neden olmadığı söylenebilir.

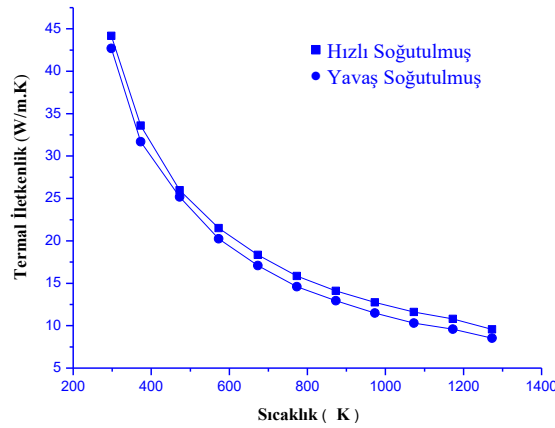


Şekil 5. Numunelerin XRD paternleri

Yavaş soğutulmuş numunelerde yoğunluk daha düşük ($3,21 \text{ g/cm}^3$) çıkmıştır ve açık porozite miktarı daha yüksektir. Yavaş soğutma uygulanan numunelerin XRD paternlerinde, β kristalin fazı dışında farklı bir kristalin faz oluşumu gözlenmemiştir. Farklı bir kristalizasyonun olmaması termal difüzyiviteyi çok fazla düşürmemiştir. Hızlı yavaş soğutma çevrimi uygulanmış numunelerin yoğunluğu sırasıyla, $3,24 \text{ g/cm}^3$, $3,21 \text{ g/cm}^3$ 'tür.

4.3. Termal İletkenlik Sonuçları

Hızlı ve yavaş soğutulmuş numunelerin termal iletkenlik sonuçları Tablo 3'de, termal iletkenliklerinin sıcaklıkla değişim eğrileri, Şekil 6'da verilmiştir. Yavaş soğutma uygulanmış numunenin termal iletkenlik değeri $42,69 \text{ W/m.K}$, hızlı soğutma uygulanmış numuneninki $44,18 \text{ W/m.K}$ 'dir. Yavaş soğutma uygulandığında termal difüzyivite $\sim\% 3,5$ azalmıştır. Yavaş soğutma uygulanmış numunelerde açık gözenek daha fazladır. Gözenekler saçılma merkezi olarak davranırlar, gözenek-bünye arasındaki kırılma indisi farkından dolayı iletim azalır, etkin ortalama serbest yol uzunluğu azalır ve gözenekler tane tane temasını azaltarak termal iletkenliği düşürür [24]. Tane sınır fazları, fazların türü ve miktarı termal iletkenliği etkiler [27].



Şekil 6. Yavaş ve hızlı soğutma uygulanmış numunelerin termal iletkenliklerinin sıcaklıkla değişimi

Bu çalışmada kullanılan UBE-Si₃N₄ tozundan farklı bir toz olan Silzot başlangıç Si₃N₄ tozu kullanılmış bir çalışmada, yavaş soğutma çevrimiyle termal difüzyivite $\sim\% 8,94$ azalmıştır [22]. Farklı başlangıç tozlarla üretilmiş numunelerde yoğunluklar aynı olmasına rağmen, bu çalışmada termal difüzyivitede daha az düşüş ($\sim\% 2,5$ azalmıştır) olmuştur. Yavaş ve hızlı soğutma sonucu sırasıyla termal difüzyivite değerleri, $\%17,28$ ve $\% 9,5$ gibi ciddi bir oranda daha yüksektir. Yani termal difüzyivite her iki çevrim sonucunda da UBE tozu ile üretilmiş bu malzeme için ciddi oranda artmıştır. Başlangıç tozundaki faz oranları farklılığı sonuçları etkilemiştir.

Tablo 3. Numunelerin termal difüzyivite ve termal iletkenlik sonuçları

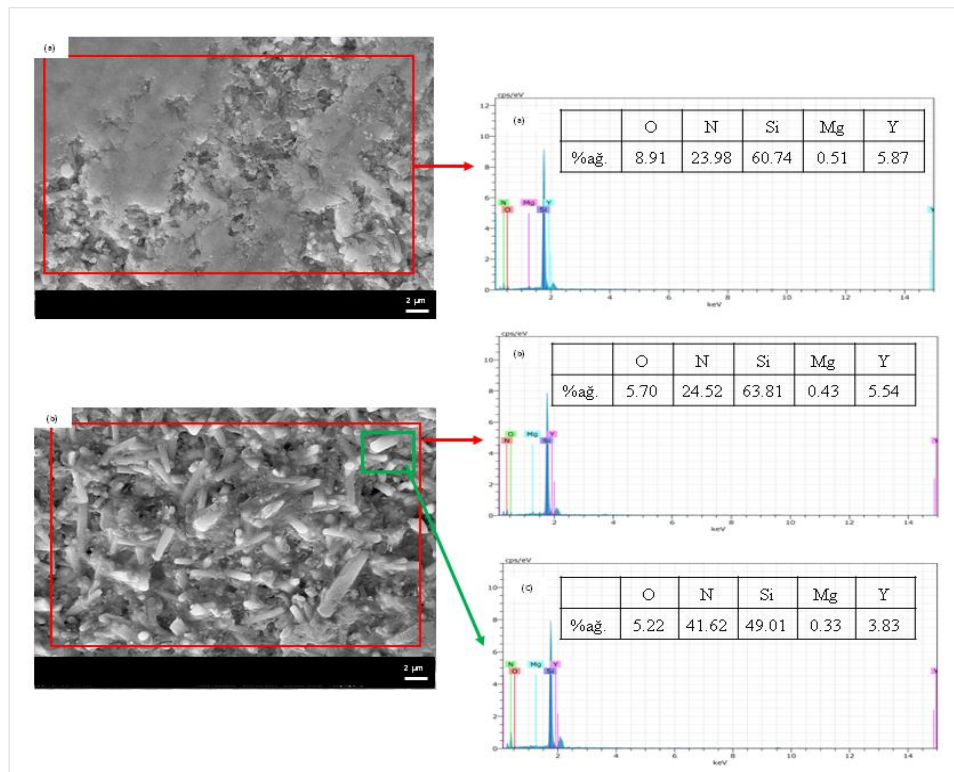
Sinterleme Koşulu	Soğutma çevrimi	Yoğunluk (g/cm^3)	%A.P.	%A.K.	Termal Difüzyivite (mm^2/sn)	Termal İletkenlik (W/mK)
1775°C-5b-2s	Yavaş	3,21	0,71	4,05	19,00	42,69
	Hızlı	3,24	0,55	3,18	19,48	44,18

Silisyum nitrür seramiklerin termal iletkenlik eğrilerinde görüldüğü üzere (Şekil 6), sıcaklık arttıkça termal iletkenlik azalmıştır. Düşük sıcaklıklarda, ısı enerjisi yüksek dalga boylu fononlarla iletilir. Yüksek dalga boylu fononların düşük sıcaklıklarda ortalama serbest yolları da uzundur ve (hatalara bağlı olarak önemli bir saçılma uğramadığından), numune boyunca devam edebilir. Bunun anlamı, yüksek iletkenlik veya çok küçük direnç demektir. Sıcaklık artışıyla yüksek frekanslı, düşük dalga

boyulu fononlar termal enerjinin taşınımında daha büyük rol oynar. Böylelikle fononların ortalama serbest yolunu azaltan Umklapp prosesi nedeniyle ve hatalar sonucunda saçılma miktarı artar [28, 29].

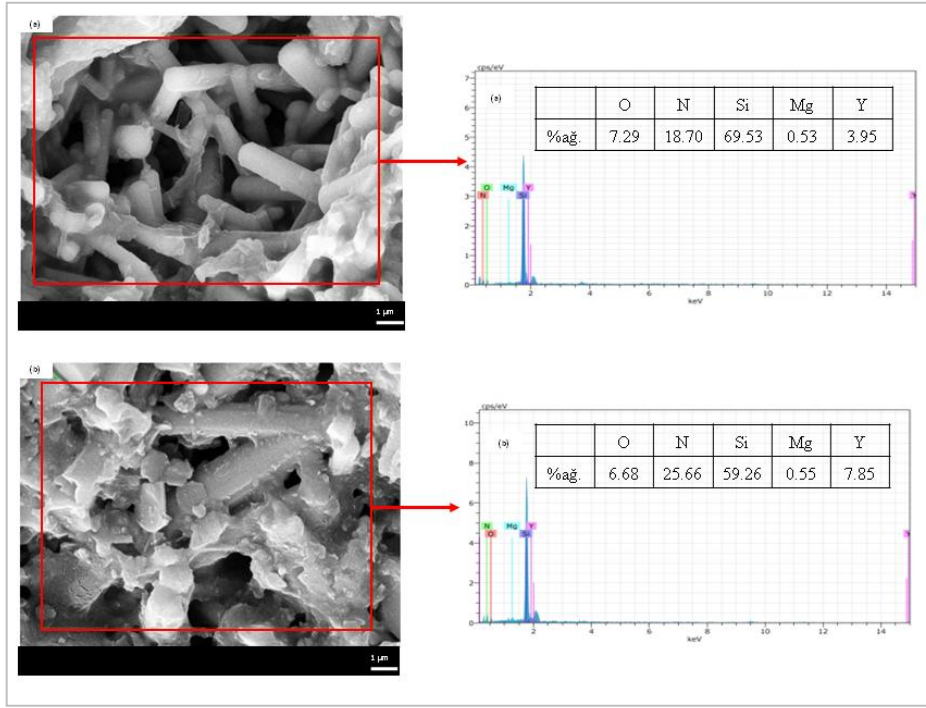
4.4. Mikroyapı Sonuçları

Hızlı (Şekil 7) ve yavaş soğutulmuş (Şekil 8) numunelerin görüntü, EDX spektrumu ve analiz sonuçları verilmiştir. Kristalizasyon oluşma potansiyeli olduğundan, yavaş soğutulmuş numunelerin tüm yüzeylerine yapılan alan ve noktasal EDX analizleri, Şekil 9 ve 10'da verilmiştir. Mikroyapı görüntülerinde, yavaş soğutulmuş numunelerde daha fazla gözenek olduğu, tane boyutunda ise önemli bir fark olmadığı görülmektedir. Termal difüzyon ve termal iletkenlik daha düşüktür. Porların saçılma merkezi olarak davrandıkları, por-bünye arasındaki kırılma indisi farkından dolayı iletimin azaldığı, etkin ortalama serbest yol uzunluğunun azaldığı ifade edilmiştir [30]. Hem alan analizi yapılmış EDX spektrumunda görülen elementler, hem de tane sınırı ikincil faz bileşimine bakmak için yapılan noktasal analizlerde, Y, Mg, Si, O ve N elementleri görülmektedir. SEM'de gelen elektron demeti ile numune arasındaki etkileşim sonucu oluşan karakteristik X-ışını sinyallerinin yaklaşık $1 \mu\text{m}^3$ 'lük bir alandan elde edilmesi nedeniyle [31], spektrumda görülen bu elementlerin tane sınırı ikincil faz kompozisyonuna mı ait oldukları yoksa elektron demetinin numune içerisinde geniş bir hacimden sinyal üretmesinden dolayı mı elde edildiğini SEM/EDX analiziyle açıklamak zordur.

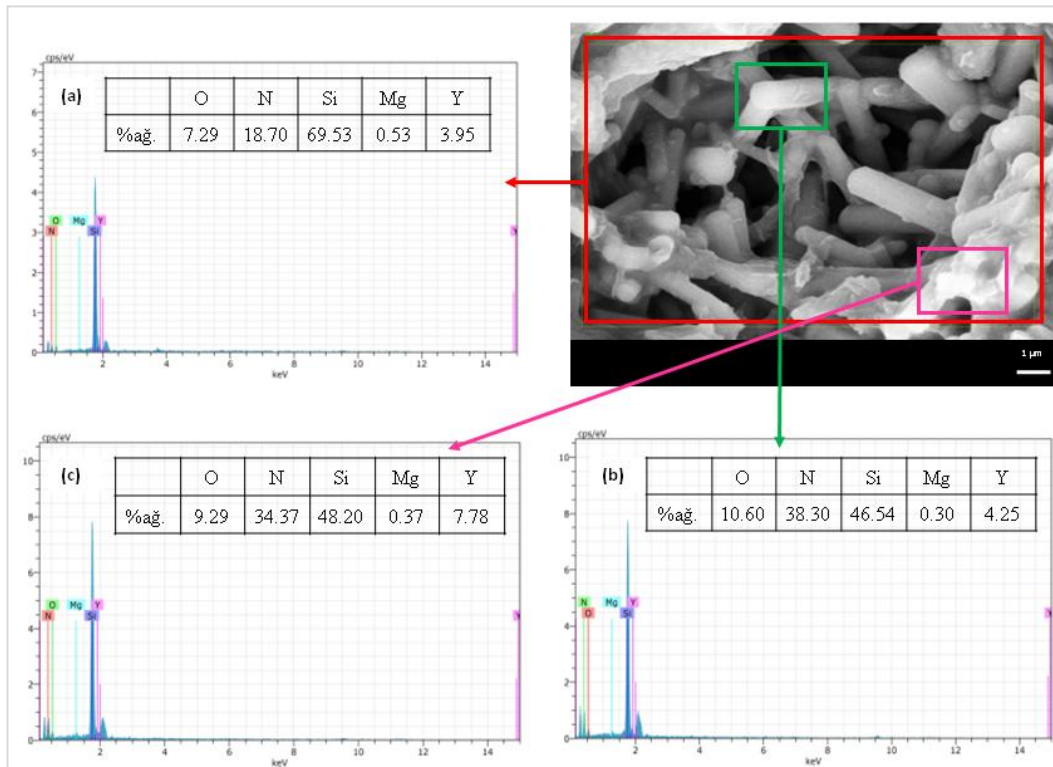


Şekil 7. Hızlı soğutma uygulanmış numunenin a) ön yüzey ve b) ters yüzeyinin mikroyapı görüntüleri (10 KX) ve EDX spekturumları

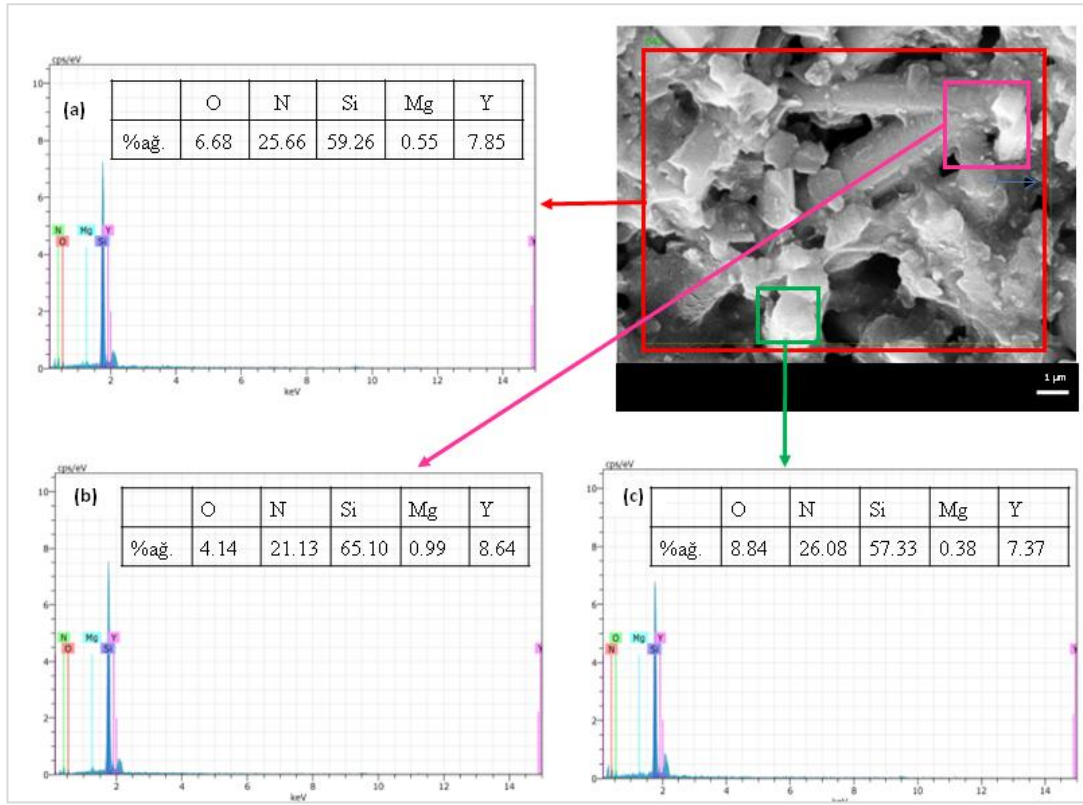
Ancak yavaş soğutma çevrimi uygulanmış numunenin EDX analizinde Mg elementinin artışı, pirosen tipi faz ($\text{MgYSi}_2\text{O}_5\text{N}$) oluşumu [32] ihtimalini güçlendirmekte olup, XRD analizlerinde kristalin fazlar görülmediğinden, oluşması beklenen bu fazın amorf olarak oluşmuş olabileceği düşünülmektedir. Ayrıca, $\text{SiO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-Si}_3\text{N}_4$ faz diyagramında [33] mevcut diğer fazlar da amorf olarak oluşmuş olabilir. Tüm bu nedenlerle, detaylı TEM çalışmalarına [34] gerek vardır çalışmanın ilerleyen kısımlarında, bu analizler planlanmıştır.



Şekil 8. Yavaş soğutma uygulanmış numunenin a) ön yüzey ve b) ters yüzeyinin mikroyapı görüntüleri (10 KX) ve EDX spektrumları



Şekil 9. Yavaş soğutulmuş numunenin ön yüzey a) alan, b) ve c) noktasal SEM-EDX Analizleri



Şekil 10. Yavaş soğutulmuş numunenin ters yüzey a) alan, b) ve c) noktasal SEM-EDX Analizleri

5. Sonuç ve Öneriler

Bu çalışmada UBE Si_3N_4 başlangıç tozu kullanılarak gaz basınçlı sinterleme ile üretilmiş Y_2O_3 ilaveli Si_3N_4 seramiklere, sinterleme prosesinde iki farklı proses çevrimi uygulanmış ve soğutma çevriminin, taneler arası faz oluşumu ve termal iletkenliğe etkisi incelenmiştir. Elde edilen seramiklerin morfolojik özellikleri SEM ile incelenmiş, yoğunluk ve ağırlık kayıpları, Arşimet terazisi ile belirlenmiş (ASTM-C373), fazların tespitinde X-ışını difraksiyon (XRD) tekniği kullanılmış, termal difüzyon testleri, Lazer Mikro Flash test cihazı kullanılarak ölçülmüştür. Elde edilen sonuçlar aşağıda özetlenmiştir:

Yavaş soğutma çevrimi uygulanması ile termal iletkenlik ~% 3,5 oranında azalmıştır.

Yavaş soğutma çevrimi uygulanmış numunenin yoğunluğu daha düşük, açık gözenek miktarı daha fazladır. Ancak, hızlı ve yavaş soğutma arasında termal iletkenlik açısından çok fark olmaması gözenek oluşumu farkının çok fazla olmamasına bağlanabilir. İki farklı soğutma rejiminde bu fark toz özelliğinden (tane boyutu, oksijen miktarı ve faz miktarı) kaynaklanmıştır.

Yavaş soğutma çevrimi uygulanmasıyla, β kristalin fazı dışında farklı bir ikincil faz kristalizasyonu meydana gelmemiş, numunelerin farklı yüzeylerinin faz analizinde de, hiçbir yüzeyde kristalizasyon görülmemiştir. Kristalizasyonun, yavaş soğutmaya rağmen önlenmesi, termal iletkenliği yüksek soğutucu altlık malzemelerin üretilmesinde dikkate değer bir sonuçtur.

Kristal yerine amorf fazların oluşup oluşmadığınının ıspat için Geçirimli Elektron Mikroskobu Teknikleri (TEM) kullanılarak amorf faza rağmen, termal difüzyonda meydana gelen azalışın düşük olmasını açıklayabilmek için daha net sonuçlar elde edilebilecektir.

Teşekkür

Bu çalışma, 2016-01.BŞEÜ.06-03 numaralı proje kapsamında, “Bilecik Şeyh Edebali Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinatörlüğü” tarafından desteklenmiştir. Bu destek için teşekkürlerimi sunarım ve ayrıca değerli görüşleri ve imkan desteği için, Prof. Dr. Servet TURAN’a teşekkürü bir borç bilirim.

Kaynaklar

- [1]. Cengel Y., “Heat Transfer: A Practical Approach”, J. Chem. Inf. Model., 2013.
- [2]. Callister W.D., Rethwisch D.G., Fundamental of Material Science and Engineering-An Integrated Approach, 2012.
- [3]. Srivastava G.P., “Theory of Thermal Conduction in Nonmetals”, Mrs. Bull. 2001, 26 (6), 445-450.
- [4]. Watari K, Shinde SL, “High Thermal Conductivity Materials”, Mrs. Bull. 2001, 440-441.
- [5]. Callister W.D., “Materials science and engineering: An introduction (2nd edition)”, Mater. Des., 1991.
- [6]. Hirao K, Watari K, Hayashi H, Kitayama M., “High Thermal Conductivity Silicon Nitride Ceramic”, Mrs. Bull., 2001.
- [7]. Haggerty J.S, Lightfoot A., “Opportunities for Enhancing the Thermal Conductivities of SiC and Si₃N₄ Ceramics Through Improved Processing”, 2008, 475-487.
- [8]. Watari K, Hirao K, Brito M.E., Toriyama M, Kanzaki S. “Hot Isostatic Pressing to Increase Thermal Conductivity of Si₃N₄ Ceramics”. J Mater Res. 1999, 79, 2485-2488.
- [9]. Okamoto Y, Hirosaki N, Ando M, Munakata F, Akimune Y. “Effect of Sintering Additive Composition on The Thermal Conductivity of Silicon Nitride”, J. Mater. Res., 1998.
- [10]. Hirao K, Zhou Y, Miyazaki H, Hyuga H. “Improvement in Thermal Conductivity of Silicon Nitride Ceramics via Microstructural Control and Their Application to Heat Dissipation Substrates”, Funtai Oyobi Fummatsu Yakin/Journal Japan Soc. Powder Powder Metall., 2017, 64 (8), 439-444.
- [11]. K. Hirao, Y. Zhou, H. Hyuga, T. Ohji, ve D. Kusano, “High Thermal Conductivity Silicon Nitride Ceramics”, Journal of the Korean Ceramic Society, 2012, 380-384.
- [12]. Hampshire S., Jack K.H., “Kinetics of Densification and Phase Transformation of Nitrogen Ceramics.”, Proceedings of the British Ceramic Society, 1981, 37-49.
- [13]. Sorrell C.C., McCartney E.R., “Engineering Nitrogen Ceramics: Silicon Nitride, Beta Prime-SiAlON and Cubic Boron Nitride..”, Mater. Forum, 1986, 148-161.
- [14]. Kitayama M, Hirao K, Tsuge A, Watari K, Toriyama M, Kanzaki S., “Thermal Conductivity of β -Si₃N₄: II, Effect of Lattice Oxygen”, J. Am. Ceram. Soc., 2004.
- [15]. Zhu X, Zhou Y, Hirao K, Ishigaki T, Sakka Y. “Potential Use of Only Yb₂O₃ in Producing Dense Si₃N₄ Ceramics with High Thermal Conductivity by Gas Pressure Sintering”, Sci Technol Adv. Mater., 2010, 11.
- [16]. Hirosaki N, Okamoto Y, Ando M, Munakata F, Akimune Y., “Thermal Conductivity of Gas-Pressure-Sintered Silicon Nitride”, J. Am. Ceram. Soc., 1996, 79, 2978-2982.
- [17]. Pllum O.J., Lewis M.H., “The Effect of Process Atmosphere on the Intergranular Phase in Silicon Nitride Ceramics”, J. Eur. Ceram. Soc., 1996, 16, 1271-1275.
- [18]. Kim J.M., Ko S Il., Kim H.N “Effects of Microstructure and Intergranular Glassy Phases on Thermal Conductivity of Silicon Nitride”, Ceram Int. 2017, 43, 5441-5449.
- [19]. Furuya K, Munakata F, Matsuo K, Akimune Y, Ye J, Okada A, “Microstructural Control of β -Silicon Nitride Ceramics to Improve Thermal Conductivity”, J. Therm. Anal. Calorim., 2002.
- [20]. Kitayama M, Hirao K, Toriyama M, Kanzaki S “Thermal Conductivity of β -Si₃N₄ : I, Effects of Various Microstructural Factors”, J Am Ceram Soc. 1999, 82, 3105-3112.
- [21]. Kitayama M, Hirao K, Toriyama M, Kanzaki S. “Thermal Conductivity of β -Si₃N₄: I, Effects

- of Various Microstructural Factors”, J Am Ceram Soc., 2004.
- [22]. Uyan P, Turan S., “Effect of Cooling Cycle after Sintering on the Thermal Diffusivity of Y_2O_3 Doped Si_3N_4 Ceramics”, *Univers. J. Mater. Sci.*, 2018, 6(1), 39-47.
- [23]. Gazzara C.P., Messier D.R., “Determination of Phase Content of Si_3N_4 by X-Ray Diffraction Analysis”, *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 1977.
- [24]. Richerson D.W., *Modern Ceramic Engineering*, Marcel Dekker Inc, New York, 2005.
- [25]. Parker W.J., Jenkins R.J., Butler C.P., Abbott G.L., “Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity”, *J. Appl. Phys.*, 1961, 32, 1679-1684.
- [26]. Watari K, Seki Y, Ishizaki K “Temperature Dependence of thermal Coefficients for HIPped Silicon Nitride”, *Nippon Seramikkusu Kyokai Gakujutsu Ronbunshi/Journal Ceram. Soc. Japan*. 1989, 97(2), 174-181.
- [27]. Lin Y, Ning X.S., Zhou H, Chen K, Peng R, Xu W., “Study on the Thermal Conductivity of Silicon Nitride Ceramics with Magnesia and Yttria as Sintering Additives”, *Mater Lett*. 2002, 57, 15-19.
- [28]. Bruls RJ, Hintzen HT, Metselaar R. “A new Estimation Method for the Intrinsic Thermal Conductivity of Nonmetallic Compounds”, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2005.
- [29]. Yokota H, Abe H, Ibukiyama M. “Effect of lattice defects on the thermal conductivity of β - Si_3N_4 ”, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2003.
- [30]. Kingery W.D., Bowen H.K., Uhlmann D.R., *Introduction to Ceramics* (2nd edition). 1976.
- [31]. Goldstein J, Newbury D., Joy D., “*Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis - Third Edition*”, Springer, 2003.
- [32]. Mandal H., “New developments in α -SiAlON Ceramics”, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 1999.
- [33]. Ching W-Y. “Electronic Structure and Bonding of All Crystalline Phases in the Silica-Yttria-Silicon Nitride Phase Equilibrium Diagram”, *J. Am. Ceram. Soc.*, 2005.
- [34]. Carter C.B., Williams D.B., *Transmission Electron Microscopy: Diffraction, Imaging, and Spectrometry*, 2016.