

반응소결 탄화규소의 제조 및 특성에 관한 연구(II): 미세구조 및 기계적 특성

박현철 · 박상환* · 최성철

한양대학교 무기재료공학과

*한국과학기술 연구원 세라믹스부

(1996년 7월 3일 접수)

A Study on Fabrication and Properties of Reaction-Bonded Silicon Carbide (II): Microstructure and Mechanical Properties

Hyeon-Cheol Park, Sang-Hwan Park* and Sung-Churl Choi

Dept. of Inorg. Mater. Eng., Hanyang Univ.

*Korea Institute of Sci. and Tech.

(Received July 3, 1996)

요 약

α -SiC와 흑연 입자의 이성분계에서, 전 연구에서는 표면전하의 조절과 분산제를 사용하여 안정한 분산조건을 정한 후, 주입성형법으로 성형체와 소결체를 제조하였다. 본 연구에서는 이 분산조건을 토대로 성형체와 반응소결체를 제조하였을 때, 분산성이 반응소결 탄화규소의 미세구조 및 기계적 성질에 미치는 영향에 대하여 조사하였다. 반응소결체의 미세구조는 전체적으로 균일한 미세구조를 보이고 있으며, 원 α -SiC 입자 주위에 새로 형성된 β -SiC가 관찰되고 있다. 반응소결 기구는, 카본이 실리콘 액상에 의해 용해-재식출되어 α -SiC 입자 주위에 epitaxial growth를 하게 된다. 이러한 균일한 미세구조를 가지는 반응소결체에 대해 곡강도, 파괴인성, Weibull modulus 등의 기계적 특성을 조사하였으며, 파단면을 통한 균열 전파 기구를 조사하였다. 밀도는 2.9 g/cm^3 , 평균 4점 곡강도는 310 MPa , 파괴인성은 $3.0 \text{ MPam}^{1/2}$ 의 값을 보였다. weibull 계수(modulus)는 3.4이었으며, 파단면 분석결과 입계파괴와 입내파괴가 혼합된 양상으로 파괴가 진행되었다.

ABSTRACT

For the binary system of α -SiC and graphite, the optimized condition of stable dispersion was investigated by controlling surface charge and dispersant in the previous work, and then the preforms and sintered body were fabricated. In this work, the effects of stable dispersion on the microstructure and mechanical properties were investigated for reaction bonded silicon carbide. It was shown that reaction bonded silicon carbide had a uniform and homogeneous microstructure, and the newly formed β -SiC was observed around the original α -SiC. For the mechanism of reaction bonding process, firstly, the carbon particles were dissolved in liquid silicon and then precipitates out around original α -SiC, and it grew epitaxially. For this reaction bonded silicon carbide having homogeneous microstructure, the mechanical properties such as bending strength, fracture toughness, weibull modulus were characterized. Also, crack propagation mode was investigated through analyzing fracture surface. The density of reaction bonded silicon carbide was 2.9 g/cm^3 , 4-p. bending strength was in the range of $310 \pm 20 \text{ MPa}$, and the fracture toughness was $3.0 \text{ MPam}^{1/2}$. The crack propagated with intergranular and transgranular mode.

Key words: Reaction-bonded SiC, Dispersion, Microstructure, Mechanical properties, Fracture mode

1. 서 론

탄화규소 재료는^{1) 3)} 고온에서의 안정성 및 다이아몬드 다음 가는 높은 경도를 가지고 있고 알루미늄 금속에 필적할만한 밀도를 가진다. 특히, 1370℃까지 산화저항성이⁴⁾ 우수하고 크립(creep)과 응력과피에 대한 우수한 저항성과 높은 열전도도 및 낮은 열팽창계수를 가지기 때문에 우수한 열충격성을 가지고 있다. 따라서 탄화규소는 질화규소와 달리 오래전부터 공업적으로 양산화되어 왔으며, 연마, 연삭재, 발열체 및 바리스타 등에 폭 넓게 사용되어 왔다. 또한 소결 WC나 알루미늄을 대체하여 화학적 슬러리 펌프(pump), 실링, 밸브 트림 등의 마모 및 부식 저항부품에 쓰여 왔다. 최근에는^{5,6)} 디젤 엔진이나 가스터빈엔진 등에 응용이 기대되고 있으며, 금속합금 대신에 탄화규소를 사용할 경우 사용온도를 900℃에서 1300℃로 늘릴 수 있으며, 연료소비를 30% 정도 낮출 수 있는 것으로 예측되고 있다. 특히, 1100℃ 이상의 고온에서 유일하게 사용될 수 있는 재료는 탄화규소와 질화규소로 알려져 있으므로 그 응용이 기대되는 재료이다.

반응소결 탄화규소는⁷⁾ 영국에서 P. Popper에 의해 고온-액 연료 차폐(cladding) 재료로 개발이 되었으며, 비교적 저온(1500℃)에서 결합이 이루어지고 반응소결 후 성형체(preform)의 원래의 치수와 형상을 그대로 유지하므로 최소한의 가공만으로 원하는 형태의 탄화규소(SiC) 재품을 쉽게 만들 수 있다는 장점이 있다. 따라서, 상압소결 탄화규소의 기술이 개발 되기 이전에는, 반응소결법(reaction-bonding process)으로 제조된 탄화규소가 많이 이용되어 왔었으며, 상압소결 탄화규소에 비해 기계적 특성이나 내산화성 등의 특성이 떨어지지 않는 재료이다.

따라서 본 연구에서는, 반응소결 탄화규소가 실제 응용이 되기 위하여 필수적인 안정한 분산을 통한 성형 공정을 연구하였으며, 이 성형체를 용융 실리콘과 반응소결 시켰을 경우 미세구조 및 기계적 특성을 평가하는 것이 본 연구의 목적이다.

2. 실험방법

2.1. 출발원료

출발원료인 α-SiC 분말과 흑연분말은 각각 UF15(Lonza-Werke GmbH, Switzerland)와 SGP5(SEC, Co., Japan)의 제품을 사용하였으며, Table 1에 이들 분말의 특성을 나타내었다. 탄화규소 분말은 평균입경 0.48 μm,

Table 1. Characteristic of Starting Material

| | | |
|----------|-----------------------|-------------------------------|
| α-SiC | Manufacturer | Lonza-Werke GmbH, Switzerland |
| | Average Particle Size | 0.48 μm |
| | BET Surface Area | 15.6 m ² /g |
| | Specific Gravity | 3.2 g/cm ³ |
| | purity | O ₂ |
| Al | | <0.03% |
| Fe | | <0.05% |
| Graphite | Manufacturer | SEC, Japan |
| | Average Particle Size | 5 μm |
| | Specific Surface Area | 11 m ² /g |
| | Purity | >99.95% |

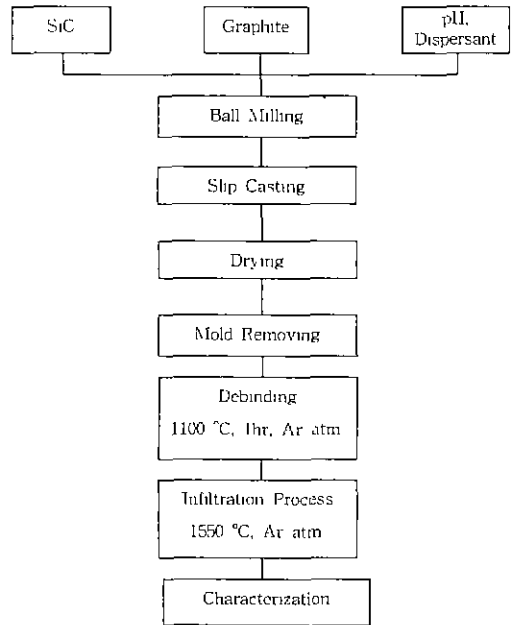


Fig. 1. Overall procedure for fabricating reaction bonded SiC.

비표면적 15.6 m²/g인 것을 사용하였으며, 흑연은 평균 입경이 5 μm이었다. 실리콘은 반도체 기관용 고순도 실리콘(순도 : 99.999%)를 사용하였다. 입자를 분산시키기 위한 분산제로는 DO# 113(sodium dioctyl sulfosuccinate, DongNam Chem., KOREA)를 사용하였으며, pH는 NH₄OH를 사용하여 조절하였다.

2.2. 소결체의 제조

본 실험의 대략적인 공정은 Fig. 1과 같으며, α-SiC : 흑연(graphite)의 비를 8 : 2로 혼합하여 성형체(preform)를 제조하였으며, 주입성형법으로 성형된 시편은 충분히 건조시킨 후(100℃, 48 hr) 진공로에서 10℃/min.의 승온속도로 1550℃까지 승온시킨 후, 30분 유지시키며 용융 금속 실리콘을 성형체와 반응시켜 침윤(infiltration)공정에 의해 반응소결체를 제조하였다. 금속 실리콘의 양은 전체 기공을 채우는데 필요한 양과 흑연과의 반응으로 소모되는데 필요한 양의 10 wt%를 초과하여 침윤을 행하였다.

2.3. 측정 및 분석

용융 실리콘 침윤공정으로 제조된 반응소결체를 가지고 소결밀도, 3점 꺾임강도, 미세구조 등을 분석하였으며, 4점 꺾임강도는 L40×W4×H3 mm의 시편을 가공하고 #1200까지 다이아몬드 휠(Ewha Diamond, KOREA)로 표면연마 후, 만능 강도시험기(model 4202 Instron, U.S. A.)를 사용하여 하부 span 20 mm, 윗 span 10 mm, cross head speed 0.5 mm/mm.의 조건에서 측정하였다. 상분석은 X-ray diffractometer(Philips Pw 1840, Netherland)를 이용하여 30 kV-15 mA의 조건에서 Cu target을 사용하여 측정하였다. 미세구조는 0.25 μm까지 다이아몬드 페이스트로 연마한 후, colloidal silica를 사용하여 최종연마 후, SEM (Hitach, Japan)을 이용하여 관찰하였다. 소결밀도는 ASTM-C20 방법으로 측정하였다.

파괴인성은 Lawn and Fuller¹⁰⁾에 의한 압침법과 Single Edge Notched Beam(SENB) 방법¹¹⁾으로 측정하였다. 시편을 곡강도 측정시와 같은 방법으로 준비한 뒤, 시편의 하단면 중앙에 넓이 0.3 mm, 깊이 1.0 mm의 노치를 만들고 3점 꺾임강도와 같은 방법으로 파괴하중을 구한 후 다음식으로 파괴인성을 구하였다.

$$K_{Ic} = \frac{3PL}{2bd^2} a^{1/2} Y$$

- K_{Ic} : 파괴인성
- P : 파괴하중
- d : 시편의 두께
- L : span 길이
- a : 노치 깊이
- b : 시편의 폭
- Y : 형상 계수

Weibull 계수는¹²⁾ 시편 24개를 곡강도 측정시와 같은 방법으로 준비한 뒤, 각 시편의 곡강도 값을 구하였으며,

X-축을 ln α_{1-p}(강도), Y-축을 lnln[1/(1-P_i)](파괴확률)로 하여 그래프를 그린 후 linear regression method로 기울기(m, weibull modulus)를 구하였다.

$$\ln \ln \left(\frac{1}{1-P_i} \right) = m \ln \sigma_{ip} + m \ln \sigma_0 + \ln K$$

3. 결과 및 고찰

3.1. 반응소결 탄화규소체의 상분석 및 미세구조

Table 2에서 주어진 것처럼, 1550℃에서 30분간 용융 실리콘을 침윤시켜 제조된 반응 소결체의 밀도는 2.9 g/cm³이었다. 이러한 반응소결체의 밀도는 일반적으로 기공, 잔류 실리콘, 미반응 흑연, SiC에 의존하게 되는데, 본 연구에서 제조한 반응소결체는 잔류 실리콘이 기공을 채워 기공이 거의 없는 재료가 얻어지므로 소결밀도는 잔류 실리콘(2.33 g/cm³)과 탄화규소의 밀도(3.21 g/cm³)에 주로 의존하게 된다. 따라서, 잔류 실리콘과 탄화규소의 이론 밀도로부터, 잔류 실리콘은 약 20 vol.% 이상이 됨을 알 수 있다. 잔류 실리콘은¹³⁾ 반응 소결체의 물성에 큰 영향을 미치는데, 취성 재료인 잔류 실리콘의 양이

Table 2. Green Density and Sintered Density of Reaction-Bonded SiC by Slip Casting Method.

| Material | Properties | Green Density (g/cm ³) | Sintered Density (g/cm ³) |
|---|------------|------------------------------------|---------------------------------------|
| Reaction Bonded SiC Fabricated by Slip Casting Method | | 62% of theoretical density | 2.9 |



Fig. 2. Optical microstructure of reaction bonded SiC (×500).

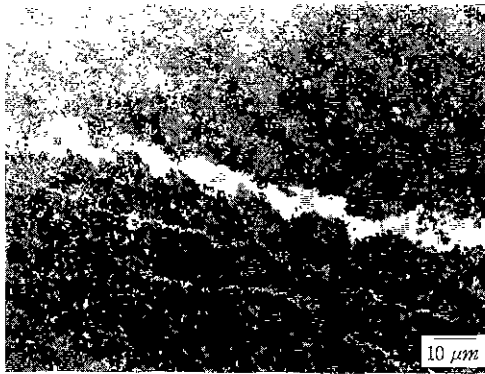


Fig. 3. Optical microstructure of reaction bonded SiC showing large defect composing of silicon (X 500).

많아질수록 곡강도 및 파괴인성 값이 떨어진다. 따라서, 잔류 실리콘의 양을 줄여서 탄화규소로만 이루어진 치밀한 소결체를 얻는 것이 기계적 물성을 향상시키는 방법 중 하나이다.

Fig. 2는 저배율(X500)로 관찰한 광학 현미경 사진으로 전형적인 반응소결 탄화규소의 미세구조¹⁴⁾를 보이고 있다. 검정색 부분은 탄화규소이며, 흰색부분은 잔류실리콘으로 기공을 채워주고 있는 양상을 보이고 있다. 출발 원료인 α-SiC와 흑연이 모두 평균입경이 5 μm 이하이므로 반응소결 후, 형성된 기공은 수 μm로 예상되며, 실제로 기공을 채운 잔류 실리콘의 크기는 1 μm 이하로 전체적으로 균일한 미세구조를 이루고 있다. 일반적으로, 반응소결 탄화규소에서 알려진 결함으로는 (Fig. 3), 잔류 실리콘이 큰 기공을 채우고 있는 것과 실리콘 상이 혈관모양으로 길게 연결되어 있는 것 등이 잘 알려져 있다. 그러나 본 연구에서는, 위와 같은 큰 결함의 존재는 미약하였으며 이것은 pH와 분산제를 사용하여, 입자들의 안정한 분산이 이루어졌기 때문인 것으로 판단된다.

Fig. 4는 용융 실리콘 침윤 공정에 의해 반응소결시킨 소결체의 X-선 분식으로 α-, β-SiC와 잔류 실리콘으로 구성되어 있으며, 미반응 흑연은 거의 존재하지 않았다. 이러한 결과는 밀도 분석에서 확인된 바와 같이, 용융 실리콘 침윤-공정에 의해 실리콘과 흑연의 반응이 충분히 이루어져 기공이 없는 치밀한 소결체가 얻어졌기 때문인 것으로 판단된다. α-SiC는 용융 실리콘과 흑연과의 반응으로 생성된 새로운 상으로, 생성기구는^{11, 16)} 흑연이 용융 실리콘에 용해되어 출발원료인 α-SiC 주위에 재석출되는 것과 흑연자체가 불균질핵형성자리(heteroge-

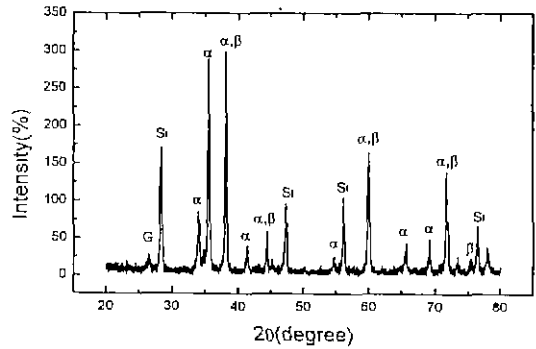


Fig. 4. X-ray diffraction patterns for reaction-bonded SiC; α: α-SiC, β: β-SiC, Si: silicon, G: graphite.

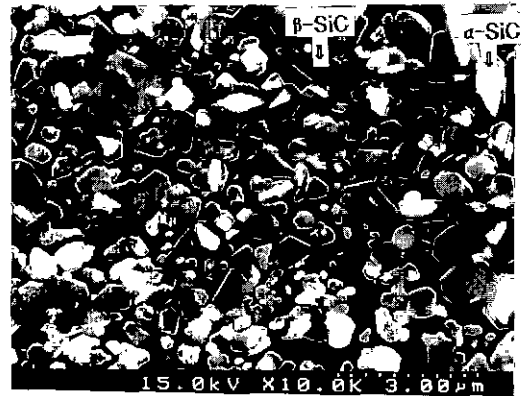


Fig. 5. SEM microstructure of reaction bonded SiC fabricated at 1550°C (X10,000).

neous nucleation site)로 작용하여 흑연에서 바로 β-SiC 생성되는 기구가 알려져 있다. 이렇게 새로 형성된 β-SiC는¹⁷⁾ 열처리 도중에 다시 α-SiC로 전이되는 경우도 있으나, 본 연구에서는 β-SiC 회절 peak가 상대적으로 큰 점으로 보아 β → α-SiC로의 전이는 충분히 진행되지 않은 것으로 판단된다.

Fig. 5는 용융 실리콘 침윤 공정에 의해 반응소결시킨 소결체의 고배율(X10,000) SEM 사진으로, 흰색 부분은 출발원료인 α-SiC이며, 회색 부분은 새로 형성된 β-SiC이다. 이렇게 α-, β-SiC의 명암 차이가 나타나는 것은 Ness and Page 등¹¹⁾이 보고하였듯이, 출발원료인 α-SiC에 있던 불순물(예 : 알루미늄)의 농도가 새로 형성된 β-SiC와 틀리기 때문에 나타나는 secondary electron emission coefficient(δ)의 차이로부터 기인한 것으로 알려져 있다. 입자크기가 3 μm 이상이고 회색부분인 큰 상은, 출발원료인 흑연이 핵형성 및 성장 자리로 작용하여 새로 β-SiC가 생성된 것으로 보이며, 이러한 상분

Table 3. Mechanical Properties of Reaction-Bonded SiC

| | | |
|---|---------------|--------------------|
| Bending Strength (MPa) | 420 (3-Point) | 310 (4-Point.) |
| Fracture Toughness (MPam ^{1/2}) | 3.0 (SENB) | 2.96 (Indentation) |

석은 TEM 분석¹⁴⁾을 통하여 이루어질 수 있다. 1 μm 이하이고 흰색 부분은 α-SiC이로 주위의 회색부분은 액상 소결중 용해-재석출 과정 기구에 의해 이루어지며, 입자의 neck이 연결되어 있는 것은 재배열과정에 의한 것으로 여겨진다.

새로 형성된 β-SiC^{9,10)}은 α-SiC 주위에 epitaxial growth를 하게 되는 데, α-SiC가 불균질핵형성자리로 작용하여 β-SiC가 생성되는 기구는 다음과 같다. 반응소결 과정은^{9,10)} 발열반응으로 소결 중 시편 내부에 온도변화가 생기며, 온도의 감소가 있는 영역에서 흑연의 파괴화가 일어나 β-SiC가 생성된다. 온도의 감소가 일어나는 부분은 주로 출발원료 표면이 되기 때문에, α-SiC 주위에 β-SiC가 성장하게 된다.

3.2. 반응소결 탄화규소체의 기계적 성질

반응소결 탄화규소의 평균 4점 꺾임강도 및 파괴인성은 Table 3에서 주어진 것처럼, 평균 310 MPa의 곡강도 값과 3.0 MPam^{1/2}의 파괴인성값을 나타내었다. 파괴인성의 경우 정확성을 기하기 위하여, Lawn and Fuller에 의한 압침법¹⁰⁾과 SENB(Single Edge Notched Beam) 방법¹¹⁾을 사용하여 구하였으며, SENB 값이 약간 높게 나왔다. 그러나 큰 차이는 없었으며, 이러한 차이는 압침(indentation) 방법의 경우, 균열길이를 측정후에도 균열이 시간에 지남에 따라 성장하기 때문에 파괴인성 값이 작은 범위로 감소하게 되는 것과 SENB 방법의 경우에 노치를 낼 때 어느 정도 실험오차(노치 너비 차이 등)가 있으므로 압침법과 SENB 값의 차이가 존재하는 것으로 여겨진다. 본 실험의 강도값은 4점 곡강도 값은 평균 310 MPa이었으며, 3점 곡강도 값은 평균 420 MPa의 값을 보였다. 이러한 강도값의 차이는 Fig. 6에 주어졌듯이 낮은 Weibull 계수 즉, 낮은 신뢰도 때문인 것으로 판단된다. 그러나 일반적인 상압소결 탄화규소 소결체에 비하여, 강도값 및 파괴인성치는 우수하였으며^{11,2)}, 비교적 저온에서 소결이 가능하고 소결후 수축율이 1~3% 미만인 것을 감안한다면 경제성 있는 소결 공정이다. 이러한 기계적 성질은 탄화규소와 흑연입자의 분산을 통하여 응집을 억제하고 결합의 생성을 줄이는

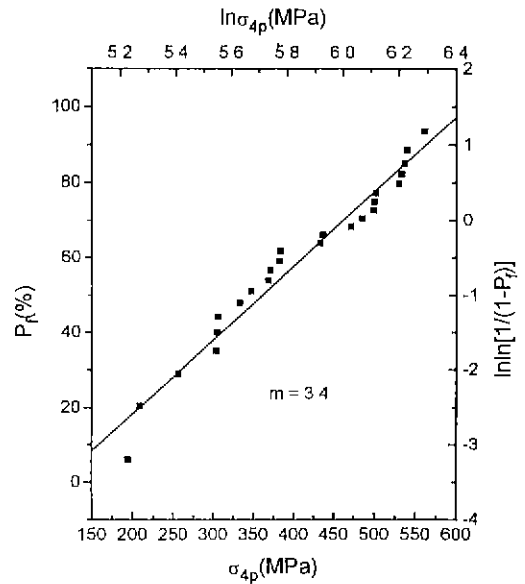


Fig. 6. Weibull plot for reaction bonded SiC; m=3.4.



Fig. 7. SEM microstructure of reaction bonded SiC showing crack propagation

것이 가능하였기 때문이다. 즉, 균일한 미세구조를 얻는 것이 가능하였기 때문인 것으로 판단된다.

3.3. 반응소결 탄화규소체의 신뢰도 분석

Fig. 6은 반응소결 탄화규소의 Weibull plot이다. weibull 계수가²¹⁾ 80% 이상의 정확성을 가지기 위해서는 최소한 30개 이상의 시편을 곡강도 실험을 통해서만 가능하지만, 본 실험의 경우 시편수가 24개였으며, 정확성은 64%이다. Weibull 계수의 추정은 강도와 파괴 확률의 그래프를 linear regression method로 기운기를 구하였으며, 강도는 190~540 MPa의 값을 보였고, Wei-

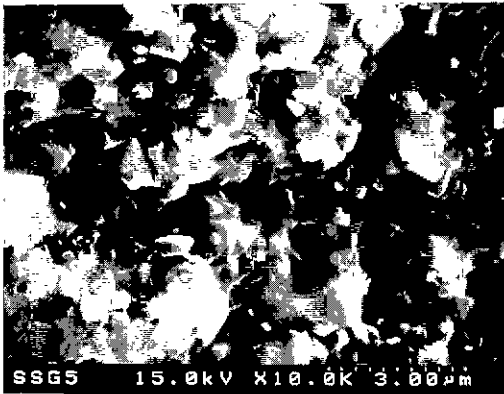


Fig. 8. Fractured surface of reaction bonded SiC showing fracture mode.

bul 계수는 3.4이었다. Weibull 계수의 의미는 단순히 통계학을 바탕으로 한 것으로 Weibull 계수가 크면 그 재료는 비교적 균일한 결함의 크기, 분포 및 모양을 가지고 있어서 강도의 분포가 좁고 신뢰도가 상당히 높음을 나타낸다. 이 값은 상압소결 탄화규소의 Weibull 계수 값이 3.0~5 정도에^{12,19)} 비해 약간은 떨어져 있다. 일반적으로 금속이나 질화규소 소결체가 10 이상의 Weibull 계수를 보이며 이러한 재료에 비해 신뢰도는 떨어져 있음을 알 수 있다.

Fig. 7은 반응소결 탄화규소의 균열전파 양상을 보여 주고 있는 SEM 미세구조 사진으로 잔류 실리콘 부분에서는 균열이 거의 직선에 가깝게 진행하고 있으며, 탄화규소 입자 주위로 균열이 편향되고 있음을 알 수 있다. 즉, 균열 편향각도는 탄화규소 입자 주위에서 크며, 실리콘 주위에서는 균열편향 각도가 작고 거의 일정하게 나타나고 있다. 일반적으로, 균열전파시²⁰⁾ 입계가 파괴에 대한 저항 감소를 제공하여 파괴인성을 증가하게 한다. 따라서, 잔류실리콘의 양을 줄이고 미세한 탄화규소 만으로 이루어진 소결체를 얻는 것이 향상된 기계적 성질을 얻기 위한 방법 중 하나인 것으로 판단된다.

특히 균열 편향은 Fig. 8의 파단면 분석으로부터 알 수 있듯이 입계파괴 현상과 관련이 있으며, 입계파괴는 주로 탄화규소가 많이 있는 부분에서 일어났다. 즉, 입자가 떨어져 나간 자리로 보이는 부분은 원래의 출발 원료인 탄화규소의 형태와 유사하며, 탄화규소에서 균열편향원으로 작용하는 것으로 판단된다. 따라서, 본 실험에서는 탄화규소 주위에는 입계파괴가 잔류 실리콘 부분에는 입내파괴가 동시에 존재하는 양상으로 나타났다.

4. 결 론

α -SiC와 흑연의 2성분계에서 주입성형법으로 용융 실리콘 침윤공정에 의해 반응소결을 시켰을 때, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 탄화규소와 흑연의 안정한 분산조건으로부터 균열(기공포함)이나 치수의 변화가 거의 없는 치밀한 소결체를 얻을 수 있었다. 미세구조는 균일하였으며, α -SiC 주위에 β -SiC가 핵형성 및 성장함을 관찰할 수 있었다.
2. 용융 실리콘 침윤에 의한 반응 소결체의 밀도는 2.9 g/cm³, 3점 곡강도는 420 MPa, 파괴인성은 3.0 MPam^{1/2}의 값을 각각 나타내었다
3. Weibull 계수는 3.4의 값을 보였으며, 4점 곡강도 분포는 190~540 MPa의 값을 나타내었다. 파단면 분석 결과 입계파괴와 입내파괴가 혼합된 양상을 보였으며, 균열편향은 주로 탄화규소 입자 주위에서 발생하였고, 잔류 실리콘 부분에서는 균열 편향이 관찰되지 않았다.

REFERENCES

1. John B. Wachtman Jr, "Structural Ceramics," pp. 99-160. Vol. 29. Academic Press, Inc., (1989)
2. C.B. Lim, and Ph. D. thesis, Tokyo Inst. of Tech., september, (1989).
3. 김찬중, 홍계원, 원동연, "탄화규소체의 성질과 제조기술· I 반응소결 탄화규소체 제조기술," 요업재료의 과학과 기술, 7(1), 30 (1992).
4. J. Woodthorpe, "Industrial Applications for Reaction-bonded Silicon Carbide," *Ceramic Technology International*, **52**, (1994).
5. E.M. Lenoe, and Joseph L. Meglen, "International Perspective on Ceramic Heat Engines," *Ceram Bull.*, **64**(2), 271-275 (1985)
6. D.R. Johnson, A.C. Schaffhauser, V.J. Tennery and E. L. Long, Jr, "Ceramic Technology for Advanced Heat Engines Project," *Ceram Bull.*, **64**(2), 276-281 (1985).
7. P. Popper, "The Preparation of Dense Self-Bonded Silicon Carbide," *Special Ceramics*, Heywood London, pp. 209-219 (1960).
8. C.W. Forrest, F. Kennedy and J.V. Shennan, "The Fabrication and Properties of Self-Bonded Silicon Carbide Bodies," *Special Ceramics*, 5Ed., by P. Popper, The Brit. Ceram. Res. Assoc., Stoke-on-Trent, pp. 99, (1972).
9. M.E. Washburn and W.S. Coblenz, "Reaction-Formed Ceramics," *Ceram Bull.*, **67**(2), 356-363 (1988).
10. B.R. Lawn and E.R. Fuller, "Equilibrium Penny-Like Cracks in indentation Fracture," *J. Mat. Sci.*, **12**, 2016-

- 24 (1975).
11. G.R. Antis et al., "A Critical Evaluation of Indentation Techniques for Measuring Fracture Toughness. I, Direct Crack Measurements. II, Strength Method," *J Am Ceram. Soc.*, **64**(9), 533-43 (1981).
 12. 이준근, "세라믹스의 기계적 특성," pp. 34-64. 반도체출판사, (1994).
 13. R.L. Mehan, "Effect of SiC Content and Orientation on the Properties of Si/SiC Ceramic Composite," *J Mat. Sci.*, **13**, 358-366 (1978)
 14. J.N. Ness and T.F. Page, "Microstructural Characterization of Reaction-Bonded Silicon Carbide," *J. Mater Sci.*, **21**, 1377-97 (1986).
 15. C.B. Lim and T Iseki, "Formation and Transportation of Intergranular and Modular Fine-Grained β -SiC in Reaction-Sintered SiC," *Advanced Ceramic Materials*, **3**(6), 590-94 (1988).
 16. R. Pampuch, J. Bialoskoreki and E. Walasek, "Mechanism of Reactions in the Si_3C_2 System and the Self-Propagation High-Temperature Synthesis of Silicon Carbide," *Ceramic International*, **13**, 63-68 (1987).
 17. S.S. Shinozaki, J.E. Noakes and H. Sato, "Recrystallization and Phase Transformation in Reaction-Sintered SiC," *J Am. Ceram. Soc.*, **61**(5-6), 237-242 (1978).
 18. R. Pampuch, E. Walasek and J. Bialoskoreki, "Reaction Mechanism in Carbon-Liquid Silicon Systems at Elevated Temperatures," *Ceramic International*, **12**, 99-106 (1986).
 19. Ceramic Source 86 vol. 1, Am. Ceram. Soc., Columbus OH.
 20. K.T. Faber and A.G. Evans, "Intergranular Crack-Deflection Toughening in Silicon Carbide," *Comm Am. Ceram Soc.*, **C-94**, 94-96 (1983).