

액상량이 탄화규소 소결체의 미세구조 및 상변태에 미치는 영향

이종국 · 강현희 · 박종곤 · 이은구

조선대학교 재료공학과
(1998년도 2월 18일 접수)

Influence of Liquid-phase Amount on the Microstructure and Phase Transformation of Liquid-phase Sintered Silicon Carbide

Jong-Kook Lee, Hyun-Hee Kang, Jong-Gon Park and Eun-Gu Lee

Dept. of Mater. Eng., Chosun Univ., Kwang-Ju, 501-759
(Received February 18, 1998)

요 약

액상을 형성하는 소결조제로 2, 5, 10 mol%의 YAG(yttrium aluminum garnet) 분말을 β 상 탄화규소 분말에 첨가한 후, 1850°C에서 소결시간을 달리하여 소결체를 제조한 다음, 소결시 일어나는 미세구조 변화와 상변태 특성을 첨가된 액상량과 소결시간의 변화에 대하여 고찰하였다. 첨가된 YAG 액상량이 증가할수록 입성장속도는 감소하였으나 치밀화와 소결체를 구성하는 입자들의 장단축비(aspect ratio)는 증가하였다. 소결동안 β 상 탄화규소 입자로부터 α 상 탄화규소 입자로의 상전이는 액상량 증가에 의해 촉진되었으며, 생성된 α 상 입자들의 다형 종류와 양은 액상량과 소결시간에 의존하였다.

ABSTRACT

β -silicon carbides with yttrium aluminum garnet of 2, 5, 10 mol% were prepared by a liquid-phase sintering, and the microstructural evolution and phase transformation were investigated during sintering as functions of liquid-phase amount and sintering time. The rate of grain growth decreases with the addition of the amount of yttrium aluminum garnet (YAG) in the SiC starting powder, however, the apparent density and the aspect ratio of grains in sintered body increase. The phase transformation from β -SiC to α -SiC was enhanced by increasing the liquid-phase amount. The kinds of polytypes and amount of transformed α -SiC were dependent on the liquid-phase amount and sintering time.

Key words : Silicon carbide, Liquid phase sintering, Grain growth, Microstructure, Phase transformation

1. 서 론

탄화규소 세라믹스는 강한 공유결합을 형성하고 있기 때문에 소결조제 없이 상압소결 만으로는 고밀도 소결체를 얻기가 매우 어려운 것으로 알려져 있다.¹⁾ 이에 따라 구조 세라믹스로 사용되는 고밀도 탄화규소 소결체는 소결조제를 첨가하여 상압으로 제조하거나 또는 가압소결하여 제조되고 있다.^{2,3)} 탄화규소의 상압소결시 첨가되는 소결조제로는 B, B₂C, Al과 C가 동시에 첨가되는 비산화물이 초기에 사용되었으나 이들을 소결조제로 사용할 경우 소결온도가 2000~2400°C로 높아 제조시 에너지 소모가 높을 뿐만 아니라 높은 소결온도로 인하여 소결체내 탄화규소 입자크기가 매우 커서 파괴인

성이 전체적으로 크게 감소하는 단점이 있다.¹⁻⁶⁾

1980년대 Omori와 Takei 등⁷⁾이 처음 사용한 알루미늄이나, 이트리아 등의 산화물 소결조제는 탄화규소의 소결온도를 2000°C 이하로 낮출 수 있을 뿐만 아니라 소결밀도를 향상시킬 수 있어 현재 많이 사용되고 있는데, 이러한 산화물 조제를 사용할 경우 미세한 탄화규소 입자들로 구성된 탄화규소 소결체를 제조할 수 있어 파괴인성을 크게 향상시킬 수 있는 장점이 있다. 이전의 연구결과에 의하면⁸⁾ 탄화규소 소결시 첨가된 산화물 첨가제는 소결온도로의 승온 과정에서(약 1500~1650°C) 탄화규소 입자의 표면에 형성된 실리카와 반응하여 공융액상(eutectic melts)을 형성하고, 이러한 액상이 탄화규소 입자들 사이에 분포함으로써 액상소결을 촉진시키기

때문에 입자가 미세하면서도 고밀도의 소결체 제조가 가능한 것으로 알려져 있다.

탄화규소 세라믹스는 주로 소결중 상변태를 제어하거나 소결 후 열처리시 상변태 및 미세구조 제어에 의해 인성이 증진될수 있는데⁹⁾, 그 이유는 상변태 및 열처리 조건의 제어에 의해 소결체 내부의 입자모양과 입자크기를 변화시킬 수 있기 때문이다. 잘 알려진 바와 같이¹⁰⁾, 탄화규소의 경우 α 형과 β 형 탄화규소가 존재하는데 α 형 탄화규소의 분말 성형체를 소결할 경우 등면체상의 입자성장이 이루어지고, β 형 탄화규소 분말의 성형체를 상변태 이상의 온도에서 소결할 경우 α 상 탄화규소로 상변태 하면서 판상(plate-like shape)이나 막대상(rod-like shape)의 입자성장이 이루어진다. 특히 액상 소결의 경우 탄화규소 입자의 성장은 Ostwald ripening 기구에 의해서 일어나는 것으로 알려져 있다.¹¹⁾

산화물 소결조제를 첨가한 액상소결 탄화규소 소결체에서는 소결 후 액상이 입체에 존재하기 때문에 입체부분이 탄화규소 입자에 비하여 매우 취약하며, 이에 따라 균열의 전파는 대부분 입계를 따라 진행되는 입계간 파괴형상(inter-granular fracture mode)을 나타내게 된다.¹⁰⁾ 액상소결 탄화규소의 파괴인성은 α 상을 출발원료로 소결한 경우보다 β 상을 출발원료로 소결한 경우가 보다 높은 파괴인성을 나타내게 되는데¹²⁾, 이러한 이유는 입계를 따라 진행되는 균열이 판상이나 막대상 입자를 만날 경우 돌아가거나(crack deflection) 균열사이에 막대상 입자가 걸리게 되어(crack bridging) 인성이 증진되는 효과가 크기 때문이다. 따라서 β 상 탄화규소의 소결시 파괴인성을 증진시키기 위해서는 입자성장과 이에 관련된 미세구조의 제어가 필수적인데, 이와 연관된 주요인자로는 소결체의 입자크기, 입자형상과 관련되는 장단축비(aspect ratio), 밀도, 액상의 조성, 액상량, 상변태속도 및 형성된 다형의 종류 등을 들 수 있다.

본 연구에서는 β 상 탄화규소 분말에 산화물 소결조제 YAG를 첨가하여 액상소결로 소결체를 제조할 때 첨가된 산화물 소결조제의 양(액상량)과 소결시간이, 소결체의 미세구조(입자크기, 장단축비, 밀도)와 상변태(상변태 양 및 다형의 종류)에 미치는 영향을 알아보려고 하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서 사용한 출발원료로는 평균 입자크기가 $0.43 \mu\text{m}$ 의 β 상 탄화규소 분말(97.2% purity, Showadenko Co., major impurities: free carbon(1.67%), free SiO_2 (1.04%))을 사용하였는데, 이 분말은 β 상(3C)이 96%, α 상(2H)이 4%로 구성되었다. 산화물 소결조제로

는 이트리아와 알루미늄 화합물인 yttrium aluminum garnet(99.9%, High Purity Chemical Co., 37.5 mol% Y_2O_3 조성, 이하 YAG 상으로 표기)을 첨가하였다. β -SiC 분말에 YAG 분말을 2, 5, 10 mol%를 각각 첨가하고, 여기에 결합제로 PEG(polyethylene glycol)를 2.5 wt% 섞은 후, 탄화규소 용기와 불을 이용하여 에탄올을 분산매로 planetary ball mill에서 20시간 각각 혼합하였다. 80°C 로 건조된 분말을 200 mesh체로 체조립을 행한 다음, 사각몰드에서 1 MPa로 1축가압하여 1차 성형체를 약 2 cm 크기로 제작하였으며, 다시 200 MPa의 압력으로 정수압 성형을 행하여 2차 성형체를 제작하였다.

소결 중 산화물의 증발을 억제하기 위하여 성형체를 α 상 탄화규소 분말 내에 장입한 다음, 탄소저항 발열체로 내에서 아르곤 분위기로 소결을 행하였는데, 소결온도는 1850°C 로 고정하였고 유지시간은 0시간(소결온도까지 승온시킨 다음 바로 냉각한 시편)에서부터 0.5, 2, 5, 10시간으로 점차 증가시키면서 각각 행하였다. 승온속도는 상온에서 1700°C 까지는 $20^\circ\text{C}/\text{min}$ 으로 행하고, 1700°C 부터 1850°C 까지는 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 으로 하였다. 소결도중 액상의 형성과 액상량 변화에 따른 치밀화 과정의 변화를 알아보기 위하여 고온 열팽창계수 측정계(모델명; Netzsch Inst. Inc., 402 e/7, FRG)를 이용하여 온도에 따른 시편의 길이 수축량을 측정하였다.

소결 후 각 시편의 소결밀도를 아르키메데스 방법으로 측정하였고, X-선 회절분석으로 상분석을 행하였다. 측정된 X-선 회절피크의 크기를 사용하여 Tanaka 등이 제안한 방법¹³⁾으로 탄화규소의 다형분석을 행하였다. 소결된 시편을 연마한 후, Rf 플라즈마 장비(모델명; Rf Plasma Barrel Etcher PT 7150, Biorad Laboratory GmbH, Munich, FRG)를 이용하여 표면에칭을 행하였는데, 에칭은 7 vol%의 산소가 함유된 CF₄ 가스내에서 1시간 동안 행하였다. 주사전자 현미경을 이용하여 표면과 파단면의 미세조직을 관찰하였으며, 연마표면의 주사전자현미경 사진을 가지고 화학분석 처리기(모델명; Luzex III, Nileco Co., Japan)를 사용하여 평균 입자크기와 장단축비(aspect ratio)를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 액상량 변화에 따른 소결 특성

Fig. 1에는 소결 스케줄에 따른 시편의 수축량을 도식하였다. 첨가된 액상조제의 양과 관계없이 약 1350°C 부터 수축이 진행되다가 1590°C 부근에서 급격한 수축을 나타내었다. YAG 상의 용융이 1750°C 이상에서 일어나는 것을 감안할 때, 이와 같은 급격한 수축은 YAG상의 용융에 의한 소결수축에 기인되기 보다는 탄화규소 표

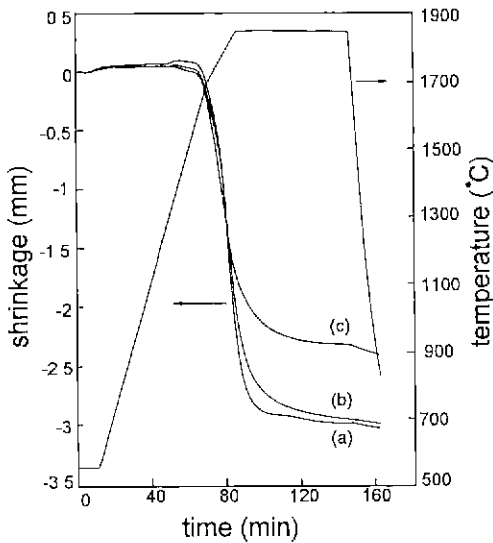


Fig. 1. Shrinkage curves of pressureless sintered β -SiC with (a) 10 mol%, (b) 5 mol% and (c) 2 mol% YAG sintered at 1850°C for 1 h.

면에 형성된 SiO₂와 YAG 상에 포함된 Al₂O₃가 반응하여 SiO₂-Al₂O₃ 산화물 조성의 액상(공용온도 1590°C)을 우선적으로 형성하기 때문인 것으로 보인다.¹⁴⁾ 이외에도 SiC-YAG계 분말 성형체를 승온하는 과정에서는 SiO₂-Y₂O₃, Al₂O₃-YAG 등 공용액상이 우선적으로 생성되는 것으로 알려져 있다.^{15,16)} 시편의 수축량은 소결온도인 1850°C 부근에서 서서히 감소하였으며, 그 정도는 액상의 양에 의존하였다. 모든 시편에서 약 30분간 소결한 이후에는 수축량이 크게 감소하였으며, 최종적인 수축량은 첨가된 액상조제인 YAG상의 양이 증가할수록 증가하였으나 그 양은 YAG 상의 양에 비례하지는 않았다. 즉, 최종적인 수축량의 경우 10 mol%와 5 mol% YAG 상을 첨가한 경우에는 큰 차이를 보이지 않은 반면에 2 mol%와 5 mol% YAG 상을 첨가한 경우에는 큰 차이를 보이고 있는데, 이는 첨가되는 액상조제의 양이 어느 임계치 이상이 될 경우 소결체간의 상대 소결밀도는 큰 차이가 없음을 의미한다.

일반적으로 액상 소결시 액상의 양이 증가할수록 소결체의 밀도는 높으나 강도(특히 고온강도)가 낮아지는 경향이 있기 때문에 소결조제의 양은 고밀도 소결체를 얻는 범위에서 가능한한 그 양을 줄이는 것이 양호한 것으로 알려져 있다.¹⁷⁾ 따라서 Fig. 1의 세가지 조건에서 나타난 결과로 적절한 액상조제의 양을 유추해 보면, 첨가되는 YAG 액상 조제의 양은 2 mol%와 5 mol% 사이에서 결정되어야 할 것으로 보인다.

Fig. 2에 액상 소결조제의 양 및 소결시간에 따른 소

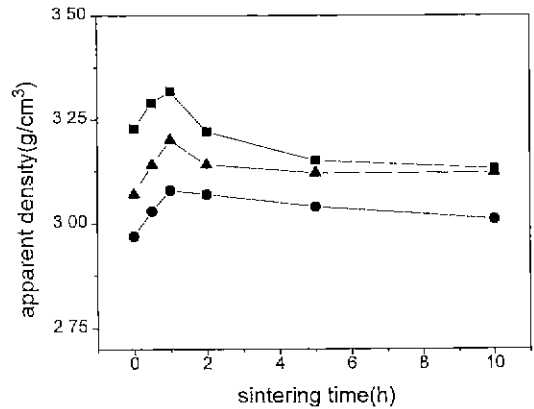


Fig. 2. Apparent densities of liquid-phase sintered silicon carbide as functions of sintering time and the amount of YAG: 10 mol% (■), 5 mol% (▲) and 2 mol% (●).

결체의 밀도를 나타내었다. 액상 소결조제의 양에 관계 없이 모든 경우에서 소결시간이 1시간까지는 소결밀도가 증가하다가 그 이후에는 소결밀도가 점차 감소하였다. 1시간 이후에 소결밀도가 감소하는 원인으로는 탄화규소와 산화물 액상간의 반응에 의해 형성된 기상 반응물의 기화를 들 수 있는데¹⁸⁾, 이러한 기화로 인하여 시편의 중량은 크게 감소한다. 실제로 1시간 소결한 시편의 경우 중량감소는 10, 5, 2 mol%의 YAG 상을 첨가한 시편에서 각각 15.1, 13.4, 8.6 wt%로 나타났으며, 소결시간이 증가할수록 그 양은 점차 증가하고, 액상 소결조제의 첨가량이 증가할수록 중량감소가 심하게 일어남을 알 수 있었다. 최고 소결밀도를 나타낸 1시간 소결 시편의 경우 상대밀도(조성의 변화가 없다는 가정하에서)는 10, 5, 2 mol% 첨가한 시편에서 각각 99.1, 97.7, 95.1%였다.

3.2. 액상량 변화에 따른 입자성장 거동 및 소결체의 미세구조 변화

Fig. 3, 4, 5, 6에는 β -SiC 분말에 액상조제인 YAG 상을 각각 10, 5, 2 mol% 첨가하여 1850°C에서 각각 0, 0.5, 2, 5시간 소결한 탄화규소 소결체의 연마면을 주사전자현미경으로 관찰한 사진을 각각 나타내었다. 0시간 소결한 시편의 미세구조(Fig. 3)에서는, 모든 시편에서 승온과정 중 치밀화가 상당히 일어난 것을 알 수 있으며, 입자의 모양이 대부분 등면체이고 크기가 비교적 균질함을 알 수 있었다. YAG 조성이 10, 5 mol%인 시편(Fig. 3의 (a), (b))에 비하여 2 mol%인 시편(Fig. 3의 (c))에서는 시편 내에 기공이 다수 존재하고, 입자의 크기도 증가한 것을 알 수 있었다.

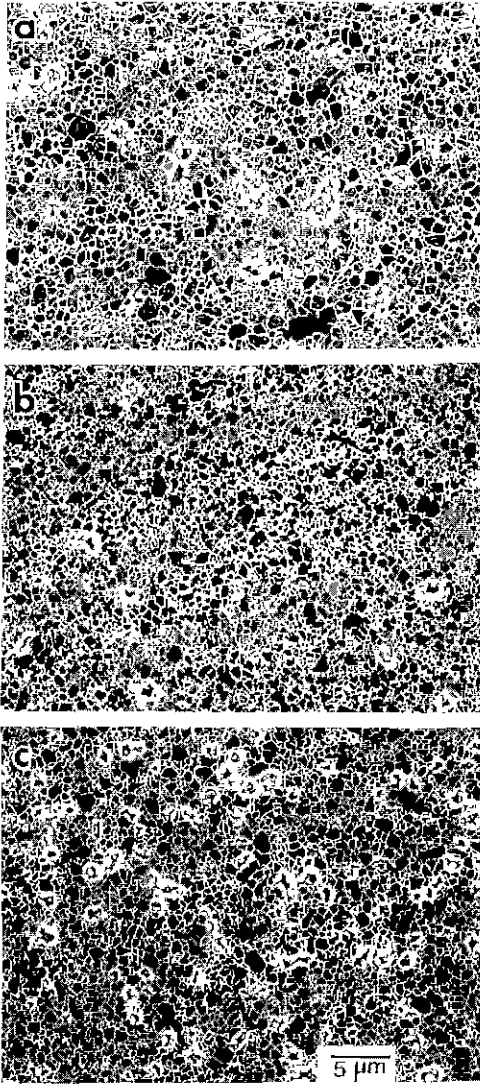


Fig. 3. Scanning electron micrographs of SiC specimen sintered at 1850°C for 0 h with (a) 10 mol%, (b) 5 mol% and (c) 2 mol% YAG.

소결시간이 0.5시간인 시편에서는 Fig. 4에서 보듯이 모든시편에서 구형이었던 입자모양이 상변태의 영향으로 각형으로 성장하고 있는데, 이러한 경향은 YAG의 양이 상대적으로 적은 시편(Fig. 4의 (b)와 (c))에서 두드러진 것을 알 수 있었다. 또한 YAG의 양이 10, 5 mol%인 시편에서는 Fig. 3에서 보이던 큰 기공들이 대부분 소멸되고 입자사이에 액상이 골고루 분포하여 대부분의 입계가 액상과 접촉되어 있으나 2 mol%인 시편에서는 입자사이에 많은 기공들이 그대로 존재하고 액상이 불균질하게 분포되어 일부 입계만이 액상과 접촉되고 대

요업학회지

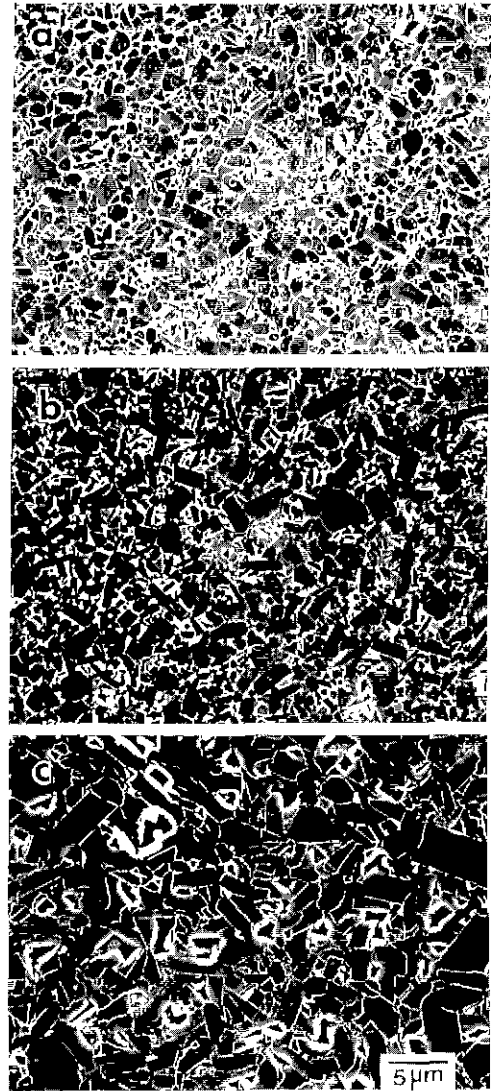


Fig. 4. Scanning electron micrographs of SiC specimen sintered at 1850°C for 0.5 h with (a) 10 mol%, (b) 5 mol% and (c) 2 mol% YAG.

부분의 입계는 입자 사이에 존재하였다. 입자크기는 첨가된 YAG의 양에 따라 더욱 큰 차이를 나타냈는데 액상량이 적을수록 입자크기가 크게 증가하였다.

2시간 소결한 시편(Fig. 5)에서는 모든 시편에서 대부분의 입자가 막대상으로 존재하였는데 액상의 조성이 많은 시편일수록 장단축비(aspect ratio)가 크게 증가하였으며, 이러한 경향은 5시간 소결한 시편에서도 지속되었다(Fig. 6). 이와같이 액상량이 많은 시편에서 입자가 길게 성장되는 것은 액상이 존재하던 공간으로 입자의 성장이 이루어질 뿐만 아니라 유동성이 큰 액상이 입자

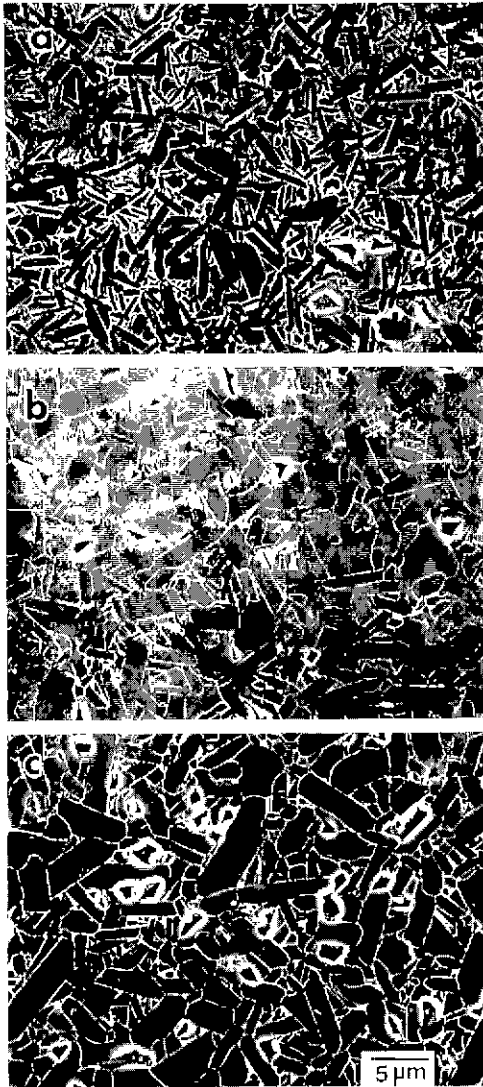


Fig. 5. Scanning electron micrographs of SiC specimen sintered at 1850°C for 2 h with (a) 10 mol%, (b) 5 mol% and (c) 2 mol% YAG.

간에 분포됨으로써 입자 성장 중에도 입자간의 공간배치가 효율적으로 이루어질 수 있었기 때문인 것으로 판단된다. 결과적으로 액상량에 따른 탄화규소의 입자성장은 액상량이 많을수록 전체적인 입자성장 속도는 감소하고, 반면에 풍부한 액상이 장축과 단축간의 입자성장 속도차를 유발시켜 액상이 많은 시편의 경우 장단축비가 큰 탄화규소 입자가 생성되는 것으로 판단된다.

Fig. 7은 주사전자현미경 사진으로부터 화상처리를 통하여 2차원으로 분석한 최대입자길이(maximum length), 최대 입자폭(maximum breadth), 평균입자크

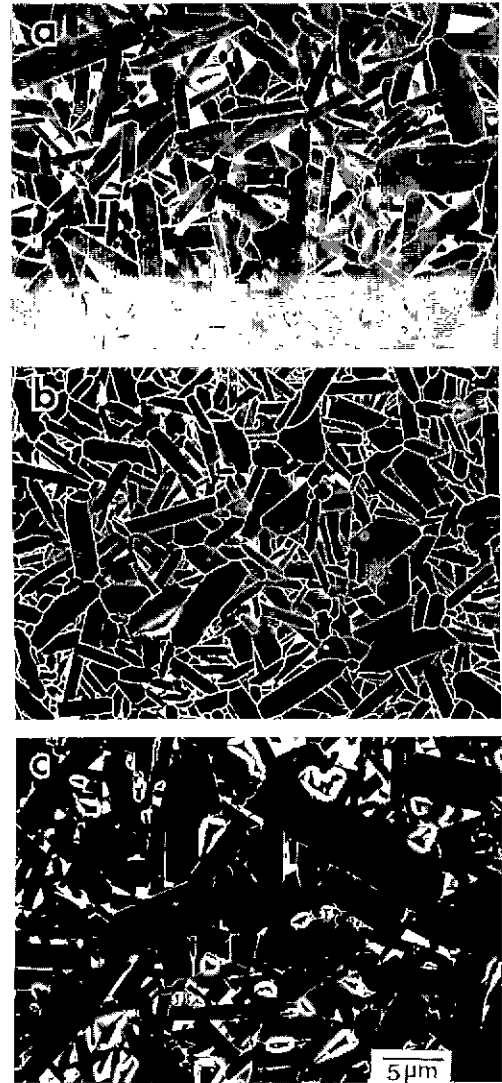


Fig. 6. Scanning electron micrographs of SiC specimen sintered at 1850°C for 5 h with (a) 10 mol%, (b) 5 mol% and (c) 2 mol% YAG.

기(mean grain size), 장단축비(aspect ratio)를 소결시간 및 액상량에 대하여 각각 나타내었다. 사진에서 본바와 같이 장축(maximum length)의 성장속도는 10 mol%의 액상량을 갖는 시편에서는 장시간 소결시 두드러지게 나타난 반면에, 2 mol%의 액상량을 갖는 시편에서는 짧은 소결시간에서 크게 나타났다. 장단축비(aspect ratio)의 경우 10 mol%의 액상량을 갖는 시편에서는 0.5~2시간 소결 간격에서 크게 증가하였고, 2시간 이후에는 오히려 약간 감소하였다. 5 mol%의 액상량을 갖는 시편의 경우 0~1시간 간격에서 두드러지게 증가하였으

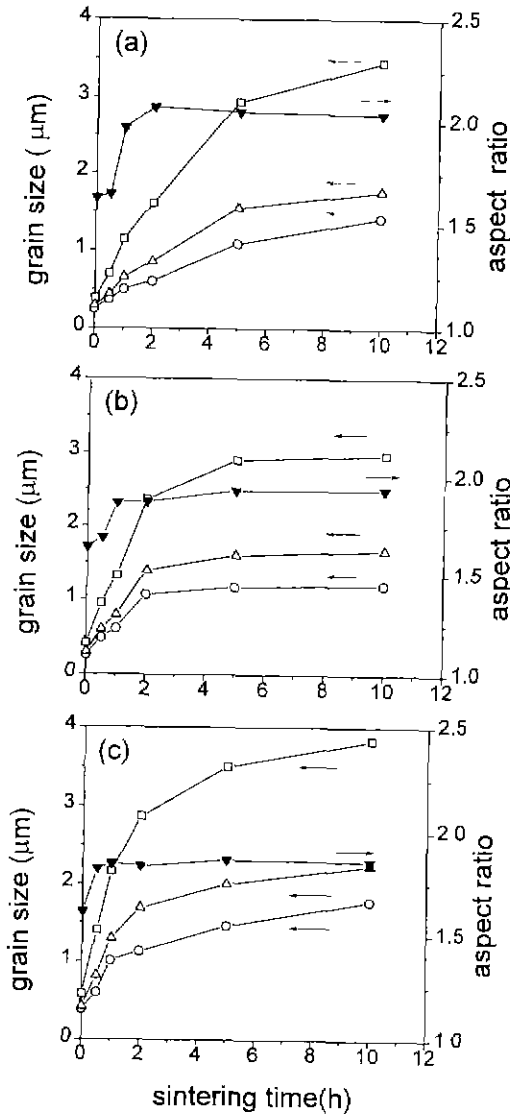


Fig. 7. Maximum length (□), maximum breadth (○), mean grain size (△) and aspect ratio (▼) of liquid-phase sintered silicon carbide with (a) 10 mol%, (b) 5 mol% and (c) 2 mol% YAG.

며, 2 mol%의 액상량을 갖는 시편에서는 0~0.5시간 간격에서 장단축비가 크게 증가하였다. 이와같은 입자성장 속도와 장단축비의 변화는 첨가된 액상량의 영향 뿐만 아니라 상변태에 따른 다형의 종류에도 크게 의존하는 것으로 알려져 있는데¹⁹⁾, α상 탄화규소만 출발물질로 사용한 시편의 경우 모든 입자가 등면체 형상을 나타내고, 반면에 β상 탄화규소 분말을 출발물질로 사용한 시편에서는 상변태가 일어나면서 모든 입자가 육각판상의 형태나 막대상 형상을 띠는 것으로 알려져 있다.¹⁹⁾

3.3. 액상량 변화에 따른 상변태 거동

Table 1에는 액상량 및 소결시간에 따른 시편의 XRD 분석과 XRD 피크로부터 계산한 다형의 종류를 주상(major phase)과 부상(minor phase)로 구분하여 각각 나타내었다. 모든 시편에서 소결이 진행됨에 따라 입방정상인 β-SiC(3C)로부터 단사정상인 α-SiC(6H,4H)로 상변태되는 것을 알 수 있으며, 상변태 경향은 액상량에 의존하여 약간씩 다르게 진행되는 것을 알 수 있다. 즉, 상변태는 액상량이 많을수록 빠르게 진행되었으며, 중간과정에서 6H상이 다량 형성되었다가 최종적으로 4H 상으로 존재하였다. 반면에 액상량이 적은 시편(2 mol% YAG 상 함유)에서는 β-SiC에서 α-SiC로 느리게 상변태가 진행되었으며, 6H상의 형성이 적고 대부분 4H상으로 상변태가 진행되었다. 상변태와 장단축비를 연관시켜 고찰하여 보면 4H상으로의 상변태가 활발한 구간에서 장단축비가 크게 증가한 것을 알 수 있는데, 이는 일반적으로 4H상이 막대형 형상을 나타내는 반면에 6H상은 판상의 입자형상을 나타내기 때문인 것

Table 1. SiC Polytypes of Sintered Bodies as Functions of Sintering Time and the Content of YAG Phase

Content of YAG phase (vol%)	Sintering time (h)	Major* phases	Minor ^{††} phases	Tracers [‡]
10	0	3C>>6H	15R	15R
	0.5	6H	3C,15R	
	1	6H>4H	3C	
	2	4H>6H	3C	
	5	4H>>6H	3C	
	10	4H	6H	
5	0	3C	6H,4H	15R
	0.5	3C>4H	6H	
	1	4H>3C	6H	
	2	4H>>3C	6H	
	5	4H	6H>3C	
	10	4H	6H	
2	0	3C	4H	6H, 15R
	0.5	4H,3C	6H	
	1	4H>3C	6H	
	2	4H>3C	6H	
	5	4H	6H,3C	
	10	4H	6H,3C	

SiC polytypes was estimated very roughly as ^{*}tracer (<10%), ^{**}minor phase (10~20%) and ^{*}major phase (>30%). Signs of inequality (> and >>) are indicated the small (10~15%) and large (more than 20%) differences between two phases, respectively.

으로 사료된다.¹⁶⁾

4. 결 론

탄화규소 소결첨가제인 YAG(yttrium aluminum garnet) 분말의 양을 달리하여 β 상 탄화규소 소결체를 1850°C에서 제조한 다음, 액상량 및 소결시간의 변화가 소결체 미세구조 변화와 상변태에 미치는 영향을 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다. 액상의 형성은 1590°C부터 시작되었으며, 소결체의 밀도는 1시간 소결했을 때 가장 높게 나타났다. 첨가된 YAG 액상량이 작을수록 입자성장 속도는 증가하였으나 소결체를 구성하는 입자들의 장단축비(aspect ratio)는 오히려 감소하였다. 장단축비는 β -SiC(3C)로부터 α -SiC인 4H상으로의 상전이 동안 크게 증가하였으며, 액상량이 작은 시편일수록 장단축비는 소결 초기에 크게 증가하였다. 액상량이 많은 시편의 경우 상전이는 β -SiC(3C)로부터 α 상인 6H를 거쳐 4H로 전이하였으며, β 상 탄화규소 입자로부터 α 상 탄화규소 입자로의 상전이가 촉진되었다.

감사의 글

본 연구는 1996년도 한국과학재단 특정기초연구(과제번호:96-0300-02-01-3) 지원에 의하여 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

- M. Srinivasan, "The Silicon Carbide Family of Structural Ceramics," Structural Ceramics, Ed. by J.B. Wachtmann, Jr, Academic Press (1989).
- H. Tanaka, "Sintering of Silicon Carbide," Silicon-Carbide Ceramics, Ed. by S. Soiniya and Y. Inomata. Uchida Rokakuho Publishing Ltd., Tokyo, pp 155-173 (1988).
- K. Hunold, "Sintering and Hot Isostatic Post-Densification of Silicon Carbide," *Powder Metallurgy International*, **21**(3), 22-26 (1989).
- W. Bocker and H. Hausner, "The Influence of Boron and Carbon Additions on the Microstructure of Sintered Alpha Silicon Carbide," *Powder Metallurgy International*, **10**(2), 87-89 (1976).
- D.H. Stutz, S. Prochazka and J. Lorenz, "Sintering and Microstructure Formation of β -SiC" *J. Am. Ceram. Soc.*, **68**(9), 479-482 (1985).
- R.H.J. Hannink, Y. Bando, H. Tanaka and Y. Inomata, "Microstructural Investigation and Indentation Respose of Pressureless-sintered α -SiC and β -SiC," *J. Mater. Sci.*, **23**, 2093-2101 (1988).
- M. Omori and H. Takei, "Pressureless Sintering of SiC," *J. Am. Ceram. Soc.*, **65**(6), C92 (1982).
- M.A. Mulla and V.D. Krstic, "Low Temperature Pressureless Sintering of β -Silicon Carbide with Aluminum Oxide and Yttrium Oxide Additions," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **70**(3), 439-443 (1991).
- N.P. Padture, "In Situ-Toughened Silicon Carbide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**(2), 519-523 (1994).
- S.K. Lee, Y.C. Kim and C.H. Kim, "Microstructural Development and Mechanical Properties of Pressureless-Sintered SiC with Plate-Like Grains Using Al_2O_3 - Y_2O_3 Additives," *J. Mater. Sci.*, **29**, 5321-5326 (1994).
- L.S. Sigl and H.J. Kleebe, "Core/Rim Structure of Liquid-Phase-Sintered Silicon Carbide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76**(3), 773-776 (1993).
- S.K. Lee, C.H. Kim, "Effects of α -SiC Versus β -SiC Starting Powders on the Microstructure and Fracture Toughness of SiC Sintered with Al_2O_3 - Y_2O_3 Additives," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**(6), 1655-1658 (1994).
- H. Tanaka and N. Iye, "Polytypes, Grain growth and Fracture Toughness of Metal Boride Particulate SiC Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, **78**(5), 1223-1229 (1995).
- F.J. Klug, S. Prochazka and R.H. Doremus, "Alumina-Silica Phase Diagram in the Mullite Region," *J. Am. Ceram. Soc.*, **70**(10), 750-759 (1987).
- T.R. Dinger, R.S. Rai and G. Thomas, "Crystallization Behavior of a Glass in the Y_2O_3 - SiO_2 - AlN System," *J. Am. Ceram. Soc.*, **71**(4), 236-244 (1988).
- J.S. Abell, I.R. Harris, B. Cockayne and B. Lent, "An Investigation of Phase Stability in the Y_2O_3 - Al_2O_3 System," *J. Mater. Sci.*, **9**, 527-537 (1988).
- M. Mitomo, "Liquid Phase Sintering of Silicon Carbide," *Ceramics Japan* **31**(7), 563-566 (1996).
- M.A. Mulla and V.D. Krstic, "Pressureless Sintering of β -SiC with Al_2O_3 Additions," *J. Mater. Sci.*, **29**, 934-938 (1994).