

## 반응소결 탄화규소에서 실리콘의 침윤향상

신현익 · 김주선 · 이종호 · 김금호 · 송휴섭 · 이해원<sup>†</sup>

한국과학기술연구원 나노재료연구센터  
(2002년 5월 22일 접수; 2002년 7월 9일 승인)

### Silicon Melt Infiltration of Reaction-Bonded Silicon Carbide

Hyunick Shin, Joosun Kim, Jong-Ho Lee, Gyeong Ho Kim, Huesup Song and Hae-Weon Lee<sup>†</sup>

Nano-Materials Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea  
(Received May 22, 2002; Accepted July 9, 2002)

#### 초 록

반응소결 탄화규소의 잔류 실리콘 양을 최소화하기 위해 3성분계 탄화규소 분말을 혼합하여 최밀 충전 반응소결 탄화규소를 제조하였다. 기지상의 충전밀도 증가로 인해 반응소결 중 실리콘의 불완전 침윤이 발생하였으며, 이로 인한 잔류 기공은 조대 탄화규소 입자의 표면을 따라 존재함을 확인하였다. 불완전 침윤은 승온 중 분해되지 않고 남은 산화물이 실리콘의 용융 온도 이상에서 분해되어 생긴 고립기공에 의한 것으로 확인되었다. 기지상의 표면에 존재하리라 여겨지는 산화물을 제거하기 위해 침윤전 열처리 및 부식처리를 통해 완전침윤을 달성하였다.

#### ABSTRACT

Reaction-Bonded Silicon Carbide (RBSC) Ceramics were fabricated which satisfies the maximum packing density of silicon carbide skeleton in the green compacts. Such a high packing density induced incomplete infiltration during reaction-sintering; forms linear void around the interface of large alpha silicon carbide powders. During reaction-sintering, the limited extraction and entrapped gas induced by residue oxide was considered to be a reason of linear void formation. In order to improve infiltration behavior in the highly packed preform, the pre-treatment methods for residue oxide removal were proposed.

**Key words :** Reaction-bonded silicon carbide, Thermoset molding, Infiltration

#### 1. 서 론

용융 실리콘의 침윤방법을 이용한 반응소결 탄화규소 (RBSC: Reaction Bonded Silicon Carbide)는 탄소전구체로 이루어진 성형체를 탄화시켜 외부로부터 실리콘을 액상 형태로 공급하여 반응소결시켜 탄화규소 소결체를 얻는 것으로서 낮은 온도 범위에서 기공이 없는 치밀한 탄화규소 소결체를 제조할 수 있다. 또한 열전도성, 열충격 저항성, 내마모성 및 내침식성이 우수하고 열팽창계수가 낮으며, 고온강도 또한 우수하다.<sup>1-3)</sup> RBSC는 이러한 우수한 열-기계적 물성 외에도 공정상 소결수축이 거의 없고 저렴한 제조비용으로 인해 고온 열교환기, pump seals, 가스 터빈 및 반도체용 열처리 반응관 등 고온 구조용 세라믹스 소재로의 응용이 활발하다.<sup>3-9)</sup>

반응소결 탄화규소의 기계적 특성은 소결체 내 탄화규

소의 입자크기, 잔류 실리콘량, 결합의 크기에 의존하는 것으로 알려져 있다.<sup>5,10-12)</sup> 특히 소결체 내에 취성파괴 거동을 보이는 잔류 실리콘이 10~20 vol% 정도 존재하기 때문에 이로 인한 낮은 파괴인성 및 신뢰도의 문제가 제기되고 있으며, 실리콘의 용융 온도인 1410°C 이상에서 고온강도가 급격히 저하되어 고온구조 재료로서의 사용 온도가 제한되는 단점이 있다.<sup>12-15)</sup> 따라서 잔류 실리콘의 양을 최대한 줄여 실리콘에 의한 상온 및 고온특성 저하를 최소화 하려는 연구가 매우 활발하다. 한편, 최근에는 섬유강화 복합체를 기지상으로 한 반응소결체를 제조하여 파괴인성 및 신뢰도 향상에 관한 연구가 시도되고 있으며,<sup>3)</sup> 잔류 실리콘을 MoSi<sub>2</sub> 등으로 대체하여 사용온도를 높이려는 연구도 활발하다.<sup>8)</sup>

반응소결 탄화규소의 잔류 실리콘 양을 최소화하기 위해서는 높은 탄화규소 충전밀도 및 높은 잔탄율의 탄소전구체를 사용하여야 함은 물론 효과적인 실리콘 용침을 이루하여야 한다. 본 연구에서는 높은 충전효율을 갖는 성형체를 제조하기 위하여 3성분계 탄화규소 분말을 이용하고, 또한 잔탄율이 높은 페놀 수지를 탄소전구체로

<sup>†</sup>Corresponding author : Hae-Weon Lee  
E-mail : hwlee@kist.re.kr  
Tel : +82-2-958-5523 Fax : +82-2-958-5529

하여 소결체 내 잔류 실리콘의 양을 최소로 할 수 있는 최적의 조성을 결정 후 열간 가압 성형하였다. 또한 높은 충전밀도로 인한 실리콘의 불완전한 침윤을 개선하기 위하여 반응소결전 전처리 공정을 도입하여 기공이 없는 치밀한 소결체를 제조하고자 하였다.

## 2. 실험방법

출발원료로는 평균 입자크기가 350, 60, 8  $\mu\text{m}$ 인  $\alpha$ -SiC 분말(Showa Denko, Japan), 페놀 수지(KNG 100, Kolon chemical Co. Ltd., Korea)와 반응소결을 위한 실리콘 피상(Tokuyama Corp., Japan)을 사용하였다. 성형체를 제조하기 위하여 350, 60, 8  $\mu\text{m}$  SiC 분말을 각각 60 : 15 : 25의 무게비로 칭량하고 SiC 분말에 대하여 5~20 wt%의 페놀 수지를 첨가하여 혼합한 후, 50×25 mm mold를 이용하여 15 mm 두께로 100~120°C에서 10 MPa의 압력으로 40분 동안 열간 가압 성형하였다. 제조된 성형체는 1200°C, 진공 분위기에서 1시간 동안 탄화시켰다. 반응소결은 탄화체 위에 피상의 실리콘을 올려놓고 10<sup>-1</sup> torr의 진공에서 1550°C로 1시간 동안 유지하여 행하였다. 이때 1200°C까지는 5°C/min의 속도로 승온하였으며, 이후 15°C/min로 승온하였다. 사용한 실리콘의 양은 반응소결에 필요한 양과 반응소결 후 존재하는 잔류 기공을 채우는데 필요한 양을 고려하여 사용하였다. 불완전한 실리콘 침윤을 개선하기 위해 탄화체를 분위기 처리하거나 부식처리하였는데, H<sub>2</sub>(99.99%순도)분위기, 950°C에서 5시간 동안 유지하여 사용하거나 10 wt%로 희석한 HF 수용액에 담가 24시간 동안 유지한 후 에탄올에 세척, 건조하여 사용하였다. 성형밀도는 성형체의 기하학적인 부피와 질량으로부터 구하였으며, 소결체의 밀도는 ASTM C20에 따라 측정하였다. 상분석 및 미세조직 분석을 위해 X선 회절 분석, 수은 압입법(Mercury Porosimetry, MIP), EDS, 광학 현미경, SEM, TEM 등을 이용하였다.

## 3. 결과 및 고찰

평균 입자크기가 350, 60, 8  $\mu\text{m}$ 인 3성분계  $\alpha$ 상 탄화규소 분말을 사용하여 공극부피를 줄여 최대충전밀도를 갖는 탄화규소 분말의 조성비를 조사하였는데, 약 500 g의 350, 60, 8  $\mu\text{m}$  탄화규소 분말을 각각 메스실린더에 담은 후 충전하여 얻은 탄화규소 분말의 충전부피로 3성분계 탄화규소 분말의 최대충전밀도를 계산하였다. 입자크기의 비가 충분히 큰 경우, 3성분계 이론 최대충전밀도  $f_{\text{mix}}$ 는

$$f_{\text{mix}} = f_{350} + (1 - f_{350})f_{60} + (1 - f_{350})(1 - f_{60})f_8$$

이다.<sup>16)</sup> 여기서  $f_{350}$ ,  $f_{60}$ ,  $f_8$ 은 각 성분 분말의 충전부피로부터 계산된 상대 밀도이다. 최대충전밀도를 갖는 분말

**Table 1.** Variations in Relative Green Density with Different Composition of Ternary SiC Powder System

Sample ID	Fractional amount of SiC (wt%)			Relative density (%)
	350 $\mu\text{m}$ SiC	60 $\mu\text{m}$ SiC	8 $\mu\text{m}$ SiC	
1	65	25	10	72.2
2	61	30	9	73.9
3	70	22	8	71.5
4	62	23	15	76.9
5	60	20	20	78.3
6	55	30	15	76.9
7	55	20	25	78.6
8	44	23	23	78.3
9	60	15	25	79.0

성분 각각의 분율은 다음과 같이 표시된다.

$$X_{350} = f_{350}/f_{\text{mix}}$$

$$X_{60} = (1 - f_{350})f_{60}/f_{\text{mix}}$$

$$X_8 = (1 - f_{350})(1 - f_{60})f_8/f_{\text{mix}}$$

여기서  $X_{350}$ ,  $X_{60}$ ,  $X_8$ 은 최대충전밀도를 이루는 각 성분 분말의 분율이다. 따라서 350, 60, 8  $\mu\text{m}$  크기의 탄화규소 분말이 각각 무게비로 65%, 25%, 10%일 때 최대충전밀도는 89%였다. 최대충전밀도를 갖는 것으로 계산된 조성을 기초로 350, 60, 8  $\mu\text{m}$  탄화규소 분말의 혼합조성을 변화시켜 준비한 혼합분말에 5 wt%의 페놀 수지를 첨가하여 혼합 후 성형체를 제조하였다. 조성에 따른 가압성형체의 성형밀도는 Table 1과 같으며, 350, 60, 8  $\mu\text{m}$  크기의 탄화규소 분말이 각각 무게비로 60%, 15%, 25%일 때 최대충전밀도 71%였다. 실측된 최대충전밀도가 이론값에 비하여 낮고 그 조성도 다른 것을 알 수 있는데, 이는 탄화규소 분말이 구형입자가 아니고 각 분말의 크기비가 충분히 크기 않았기 때문으로, 이상적인 충전모델을 적용한 계산값과는 차이가 있었던 것으로 판단된다.<sup>16)</sup> 그러나 최대 충전밀도를 나타내는 조성이 이론값을 보이는 조성 부근에서 나타나는 것으로 보아 이론적인 계산에 의해 최대충전밀도의 조성을 예측하고 그 조성 부근을 실험적으로 조사하여 실제 최대충전밀도를 가지는 조성을 확인하는 것이 매우 효율적임을 알 수 있다. 반응 소결 탄화규소에서 탄화규소 성형체의 최대충전밀도를 달성하는 것은 최종 소결체의 잔류 실리콘량을 최소로 하는 조성에 해당하므로 이에 대한 확인은 매우 중요하다.

최대충전밀도를 갖는 것으로 나타난 조성을 이용하여 5~20 wt%의 페놀 수지를 첨가하여 프리폼을 제조하였다. Fig. 1은 페놀 수지의 첨가량에 따른 성형체의 상대 밀도를 나타낸 것인데, 탄화규소 분말에 대하여 13 wt%의 페놀 수지를 첨가하여 얻은 성형체의 경우 3성분계 탄

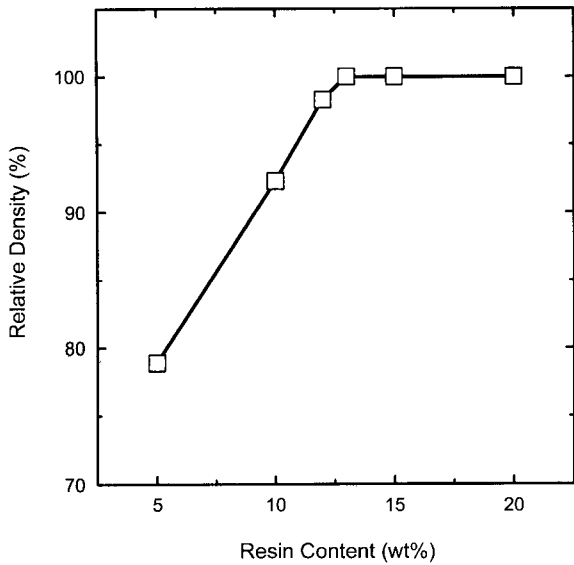


Fig. 1. Variation in relative green density as a function of resin contents.

화규소 입자사이에 형성된 공극을 페놀 수지가 완전히 채워 최대성형밀도를 갖는 것으로 나타났다. 수지 첨가량에 따라 제조한 성형체의 탄화 후 미세조직을 Fig. 2에 나타내었다. 5, 10 wt%의 수지를 첨가한 경우, 탄화규소 입자사이에 형성된 공극을 모두 채우지 못한 것을 관찰할 수 있는 반면, 13 wt%의 수지를 첨가하여 얻은 성형체의 경

우에는 탄화규소 입자사이의 공극을 모두 채워 치밀한 것을 확인할 수 있다. 한편, 13 wt% 이상의 수지가 첨가되면 상대 성형밀도는 100%이나 잉여의 수지가 서로 접촉하고 있던 탄화규소 입자간의 거리를 확장시켜 성형체의 전체부피를 증가시키고 페놀 수지를 제외한 탄화규소만의 충전밀도는 감소되었다. 따라서 잔류 실리콘의 양을 최소화하기 위해서는 12~15 wt%의 페놀 수지가 첨가된 성형체를 제조하여야 함을 알 수 있다.

성형체를 탄화 및 반응소결하여 X선 회절분석한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 알파상 탄화규소 (6H, 15R),  $\beta$ 상 탄화규소(3C type) 및 잔류 실리콘의 결정상이 관찰되었으며, 탄소나  $\text{SiO}_2$ 의 결정상은 관찰되지 않았다. 여기서,  $\alpha$ 상 탄화규소는 출발원료에 해당하며  $\beta$ 상 탄화규소는 성형체 내의 탄소와 외부로부터 공급된 용융 실리콘과의 반응으로 생성된 탄화규소이다.<sup>17-19)</sup> 5 wt%의 수지를 첨가하여 얻은 경우에 비하여 12 wt%의 수지가 첨가된 시편에서 실리콘 결정 피크가 상대적으로 작으며, 반대로  $\beta$ 상 탄화규소의 결정 피크는 증가한 것으로 보아  $\beta$ 상 탄화규소의 생성이 증가되었을 뿐 아니라 잔류 실리콘은 감소하였음을 알 수 있다.

페놀 수지를 13 wt% 첨가한 성형체를 반응소결한 후의 미세조직을 Fig. 4에 나타내었다. 반응소결 후 탄화규소가 생성되고 남은 잔류 공극을 용융 실리콘이 내부까지 침윤하여 치밀한 반응소결 탄화규소를 형성하였다. 그러나 소결체 내부에는 그림에서와 같이 선형의 공극이 일

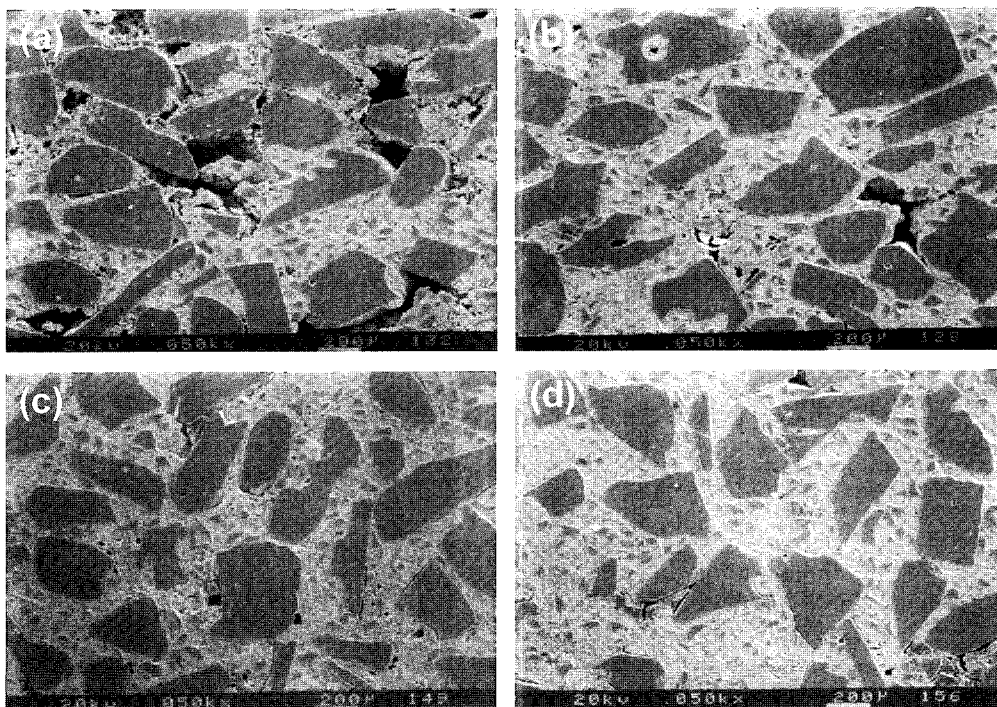
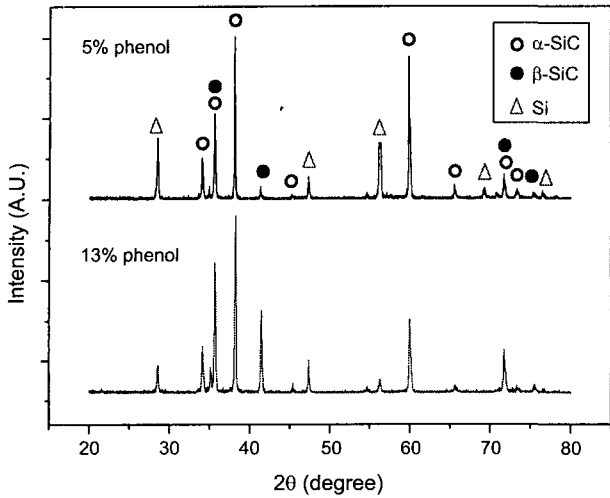


Fig. 2. Microstructures of (a) 5 wt%-, (b) 10 wt%-, (c) 13 wt%- and (d) 20 wt%-phenolic resin added green compact samples.

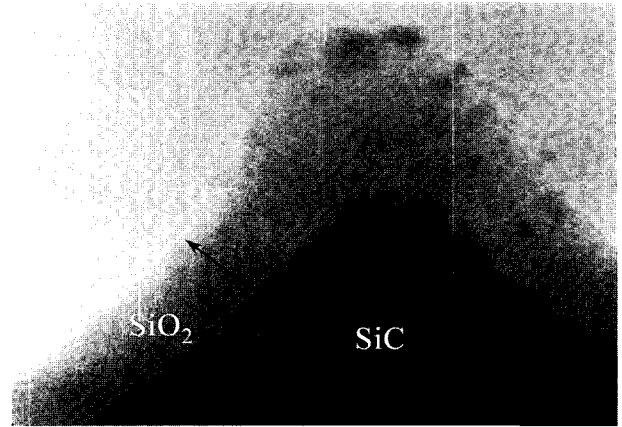


**Fig. 3.** X-ray diffraction patterns of the samples reaction-sintered at 1550°C for 1 h in vacuum. Samples are fabricated with different amounts of phenolic resin addition.



**Fig. 4.** Microstructure of 13 wt%-phenolic resin added sample reaction-sintered at 1550°C for 1 h in vacuum.

부 존재하였는데, 광학 현미경에 의한 관찰 결과, 이러한 공극은 350 μm 탄화규소 입자의 표면을 따라 존재하는 것으로 확인되었다. 불완전한 실리콘 침윤의 원인은 높은 충전밀도에 의한 폐기공의 형성 및 잔류 실리카에 의한 것으로 추정할 수 있다. 본 연구에서는 잔류 실리콘의 함량을 최소화하기 위하여 탄화규소의 충전율을 70% 이상으로 높인 후 수지를 첨가하여 성형체를 제조하였으므로 기공의 크기가 작고 국부적으로 폐기공이 존재할 가능성이 높다. 따라서 반응소결 중 용융 실리콘이 내부까지 완전히 침투하지 못할 수 있다. 그러나 과도한 충전으로 인하여 발생하는 폐기공의 모양은 다면체 혹은 불규칙한 모양을 형성하여야 하는데도 불구하고 미세조직에서 관찰된 기공의 모양이 선형이며 조립의 탄화규소 입자표면을 따라 발생한 것으로 보아 충전밀도 향상에 의한 폐기공



**Fig. 5.** TEM micrograph of interface between the linear void and the large SiC grain of 13 wt%-phenolic resin added sample reaction-sintered at 1550°C for 1 h in vacuum.

형성이 공극 형성의 원인은 아닌 것으로 판단된다.

소결체 내에 선형의 공극이 존재하는 350 μm 탄화규소 입자계면의 TEM 관찰 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 탄화규소 입자의 표면에 10~18 nm의 균일한 두께로 비정질 SiO<sub>2</sub> 산화층이 존재하는데, 모든 선형공극의 계면에 동일하게 관찰되는 것으로 보아 비정질 SiO<sub>2</sub> 산화막이 공극 형성 및 불완전 침윤과 관계되는 것으로 판단된다. 탄화규소 및 탄소에 대한 용융 실리콘의 젖음각은 각각 30° 및 0~30°로 wetting이 쉽게 일어나지만, SiO<sub>2</sub>에 대해서는 90° 이상이다.<sup>20)</sup> 따라서 탄화규소 입자의 표면에 SiO<sub>2</sub>가 존재하는 경우 높은 젖음각으로 인해 용융 실리콘의 침투가 용이하지 않아 탄화규소 입자의 표면을 따라 불완전 침윤현상이 발생한 것으로 판단된다.

탄소와 용융 실리콘이 반응하여 탄화규소를 생성하는 반응소결 중에는 반응열로 인해 국부적으로 온도가 2000°C 이상으로 상승하며, 이 때 잔류 SiO<sub>2</sub>는 실리콘에 용해된 carbon과 반응하여 기상의 SiO 또는 탄화규소로 환원된다. 그러나, 기상의 SiO가 반응소결중 제거되지 않고 시편 내에 고립되는 경우 잔류기공을 용융 실리콘이 더 이상 채우지 못하게 하여 불완전 침윤의 원인이 될 수 있다. 따라서 선형의 기공 계면에서 관찰되는 SiO<sub>2</sub> 층은 고립된 SiO 기체가 냉각시 탄화규소 표면에 증착된 것으로 판단된다.<sup>7)</sup> 산화층이 탄화규소 원료분말의 산화에 의하여 생성된 경우, 일반적으로 SiO<sub>2</sub> 내에 흑연층이 관찰된다는 이전의 결과와는 달리 본 실험에서는 산화층에 흑연층의 흔적이 없는 점도 기상의 재 증착에 의한 것임을 입증한다.

Fig. 6에 탄화체를 수소 분위기에서 950°C, 5시간 동안 열처리한 후, 반응소결하여 얻은 소결체의 미세조직을 나타내었다. 선형의 공극은 관찰되지 않았으며 시편 전체에 고르게 치밀화된 것을 확인 할 수 있었다. 이러한 경향은 수지의 첨가량이 적은 시편의 경우 더욱 확연하여 완전

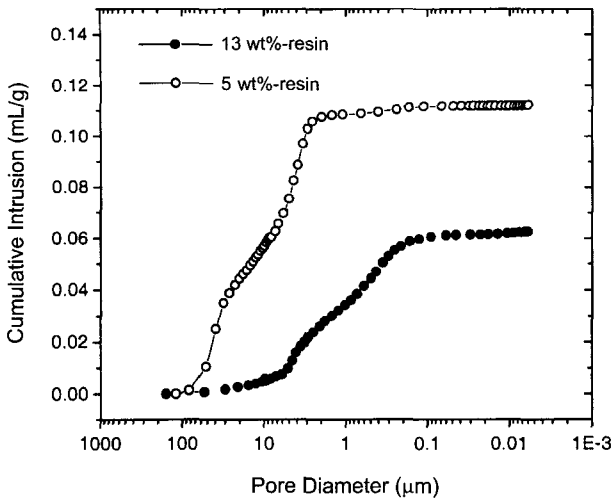


Fig. 6. Pore size distributions of the 13 wt% and 5 wt% phenolic resin added samples. Samples are carbonized at 1200°C for 1 h in vacuum.

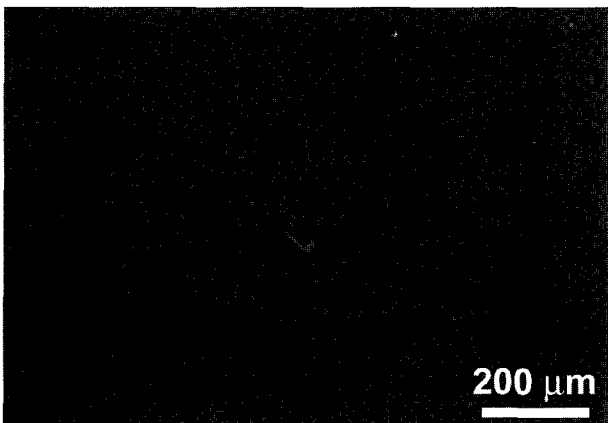


Fig. 7. Microstructure of 13 wt% phenolic resin added sample heat-treated at 950°C for 3 h in H<sub>2</sub> and then reaction-sintered at 1550°C for 1 h in vacuum.

치밀화된 반면, 최소의 잔류 실리콘을 함유할 것으로 예상되는 13 wt%의 수지가 첨가된 시편의 경우 극히 일부의 선형기공만이 존재하였다. 따라서 탄화규소 원료분말에 존재하는 산화물은 수소 분위기에서 열처리하는 동안 환원되어 시편 내부에서 제거된 것으로 판단된다.<sup>21)</sup> 한편, 탄화체를 10 wt%의 불산 희석용액에 48시간 동안 부식시킨 후 반응소결한 시편의 미세조직을 Fig. 7에 나타내었다. 수소분위기에서 열처리한 경우와 마찬가지로 실리콘이 채워지지 않은 선형기공의 수가 현저히 감소하여 치밀화되었음을 알 수 있었다.

열처리 혹은 산처리에 의한 치밀화, 즉 실리콘의 침윤향상은 잔류 산화물의 제거에 기인하는 것이므로 처리과정 중 기상 혹은 액상이 시편 내로 효과적으로 유입되어

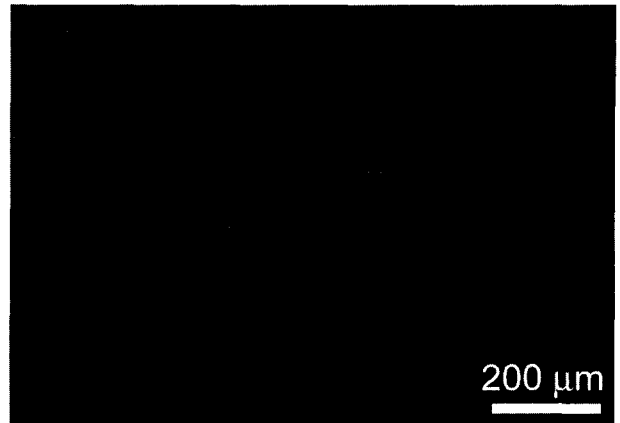


Fig. 8. Microstructure of 13 wt% phenolic resin added sample acid-treated in 10% HF aqueous solution and then reaction-sintered at 1550°C for 1 h in vacuum.

야 한다. 이는 탄화체의 개기공 구조가 매우 중요함을 의미하는데, Fig. 8에 탄화체의 개기공 분포를 측정하여 나타내었다. 5 wt%의 수지가 첨가된 성형체의 경우가, 13 wt%의 수지가 첨가된 경우에 비해 개기공의 크기가 크고 기공율도 높았다. 치밀한 반응소결체를 제조하려는 경우, 산화물 제거를 위한 환원분위기 열처리 및 산처리가 필요함을 확인 할 수 있으며, 특히 잔류 실리콘량을 최소화하기 위하여 성형밀도를 높게 하는 경우 탄화체의 기공율이 낮고 기공크기가 상대적으로 작으므로 장시간 처리해야 한다는 것을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

반응소결 탄화규소의 잔류 실리콘량을 최소화하기 위하여 최대 충전밀도를 계산하고 이를 바탕으로 실제 성형체를 제조하였다. 충전밀도가 높은 성형체를 반응소결한 경우, 시편 내부에 조립의 탄화규소 입자주위로 선형의 기공이 관찰되었다. 이러한 충전밀도의 증가로 인한 불완전한 침윤현상은 반응소결 중의 성형체 내부로부터 산화물의 제거가 원활하지 않아 시편 내에 포획되었기 때문이었다. 포획 기체에 의한 불완전 침윤현상을 개선하기 위하여 반응소결 전 열처리 및 산처리를 수행하였으며 이 때, 반응소결 후 선형기공의 수가 현저히 감소하였다. 전처리 효과는 탄화체의 기공구조 및 기공율에 의존하였는데 기공이 미세하고 기공율이 낮은 경우 장시간의 전처리가 필요한 것으로 판단되었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부지정 국가지정연구실사업(NRL)의 지원에 의해 수행되었으므로 이에 감사드립니다.

## REFERENCES

1. G. R. Sawyer and T. F. Page, "Microstructural Characterization of "REFEL" (reaction-bonded) Silicon Carbides," *J. Mater. Sci.*, **13** 885-904 (1978).
2. C. B. Lim and T. Iseki, "Transport of Fine-grained  $\beta$ -SiC in SiC/Liquid Si System," *Adv. Ceram. Mater.*, **3** [3] 291-93 (1988).
3. K. L. Luthra, R. N. Singh and M. K. Brun, "Toughened Silicon Composites-process and Preliminary Properties," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **72** [7] 79-85 (1993).
4. T. Darroudi, R. E. Tressler and M. R. Kasprzyk, "Low-cost Melt-formed Siliconized Silicon Carbide Radiant Tube Materials," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** [1] 173-79 (1993).
5. M. Wilhelm, M. Kornfeld and W. Wruss, "Development of SiC-Si Composites with Fine-grained SiC Microstructures," *J. Eu. Ceram., Soc.*, **19** [12] 2155-63 (1999).
6. Y. M. Chiang, J. S. Haggerty, R. P. Messner and C. Demetry, "Reaction-based Processing Methods for Ceramic-matrix Composites," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **68** [2] 420-28 (1989).
7. K. S. Seo, S. W. Park and H. S. Song, " $\beta$ -SiC Formation Mechanisms in Si Melt-C-SiC System," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **36** [6] 655-61 (1999).
8. C. B. Lim, T. Yano and T. Iseki, "Microstructure and Mechanical Properties of RB-SiC/MoSi<sub>2</sub> Composite," *J. Mater. Sci.*, **24** 4144-51 (1989).
9. H. W. Jun, H. W. Lee, H. S. Song, H. I. Shin, J. S. Kim and J. W. Ha, "Fabrication of Near-net-shaped Reaction-bonded Silicon Carbide Tubes by Thermoset Molding and Reaction Infiltration of Silicon Melt," *J. Ceram. Proc. Res.*, **2** [3] 1-8 (2001).
10. J. N. Ness and T. F. Page, "Microstructural Evolution in Reaction-bonded Silicon Carbide," *J. Mater. Sci.*, **21** 1377-97 (1986).
11. I. S. Han, J. H. Yang and H. S. Jung, "Effect of  $\alpha$ -Silicon Carbide Particle Size in Reaction Bonded Silicon Carbide," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **27** [4] 583-87 (1989).
12. O. P. Chakrabarti, S. Ghosh and J. Mukerji, "Influence of Grain Size, Free Silicon Content and Temperature on the Strength and Toughness of Reaction-bonded Silicon Carbide," *Ceramics International*, **20** 283-86 (1994).
13. C. W. Forrest, P. Kennedy and J. V. Shennan, "The Fabrication and Properties of Self Bonded Silicon Carbide Bodies," *Special Ceramics*, Vol. 5, pp. 99-127, British Ceram. Res. Asso., U.K., 1972.
14. G. G. Trantina and R. L. Mehan, "High-temperature Time-dependent Strength of an Si/SiC Composite," *J. Am. Ceram. Soc.*, **60** [3-4] 177-78 (1977).
15. J. H. Oh, B. J. Oh and D. J. Choi, "The Effect of Input Gas Ratio on the Growth Behavior of Chemical Vapor Deposited SiC Films," *J. Mater. Sci.*, **36** 1695-700 (2001).
16. R. M. German, Particle Packing Characteristics, pp. 181-217, Metal Powder Industries Federation, New Jersey, 1989.
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] 237-42 (1978).
18. R. Pampuch, E. Walasek and J. Bialoskorski, "Reaction Mechanism in Carbon-liquid Silicon Systems at Elevated Temperatures," *Ceram. Int.*, **12** 99-106 (1986).
19. R. Pampuch, J. Bialoskorski and E. Walasek, "Mechanism of Reactions in the Si<sub>1</sub>+C<sub>f</sub> System and the Self-propagating High-temperature Synthesis of Silicon Carbide," *Ceram. Int.*, **13** 63-8 (1987).
20. J. J. Whalen and A. J. Anderson, "Wetting of SiC, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> and Carbon by Si and Binary Si Alloys," *J. Am. Ceram. Soc.*, **58** [9-10] 396-99 (1975).
21. P. A. Lessing, A. W. Erickson and D. C. Kuerth, "Thermal Cycling of Siliconized-SiC at High Temperatures," *J. Mater. Sci.*, **36** 1389-94 (2001).