

## 상압소결 $\beta$ -SiC에 있어서 표면부에서의 액상집중과 미세구조의 변화

이종국 · 양권승 · 김 환\*

조선대학교 재료공학과

\*서울대학교 무기재료공학과

(1996년 5월 3일 접수)

## Concentration of Liquid-phase in the Surface Region and Microstructural Changes in Pressureless Sintered $\beta$ -SiC

Jong-Kook Lee, Gwon-Seung Yang and Hwan Kim\*

Dept. of Mater. Eng., Chosun Univ.

\*Dept. of Inorg. Mater. Eng., Seoul Nat. Univ.

(Received May 3, 1996)

### 요약

YAG를 첨가하여 액상소결로 제조된 SiC 세라믹스에 있어서 소결 중 표면부로의 액상집중과 이러한 현상이 표면부와 내부의 미세구조 발달에 미치는 영향을 고찰하였다. 소결 후 시편의 표면에는 새로운 반응층이 생성되었으며, 이러한 반응층은 액상의 증발을 억제하여 표면부에 액상의 집중을 유도하였다. 시편의 표면부와 내부 간에는 액상량의 차이로 인하여 미세구조의 차이가 크게 나타났으며, 표면으로부터 약 250  $\mu\text{m}$ 의 깊이에 걸쳐 미세구조가 변화하였다. 표면부는 내부에 비하여 기공이 적고 치밀하였으며, 입성장과 상변태가 느리게 진행되었다. 이에 따라 표면부는 입자가 작고 등방형의 입자형태를 나타낸 반면에, 내부에서는 입자크기가 크고 상변태의 결과로 나타난 주상(rod-like shape)이나 판상(plate-like shape)의 입자가 발달하였다.

### ABSTRACT

The liquid-phase concentration from the interior to the surface region and its influence on the microstructural changes were investigated in pressureless sintered  $\beta$ -SiC. Surface reaction-layer was formed by reaction of packing powder and volatile components on the surface during sintering, which was induced the concentration of liquid-phase in the surface region. The microstructural changes between the surface region and the interior were appeared in sintered specimen, which was resulted from the difference of liquid-phase content during sintering. Microstructural changes were observed with the depth of about 250  $\mu\text{m}$  from the surface. The grain size and aspect ratio of SiC in the interior are larger than those in the surface region, and the rate of transformation of  $\beta$ - to  $\alpha$ -SiC during sintering is higher in the interior than that in the surface region.

**Key words:** Pressureless sintered  $\beta$ -SiC, Liquid-phase concentration, Microstructural change, Surface reaction-layer

### 1. 서 론

SiC 세라믹스는 경도 및 고온강도가 우수할 뿐만 아니라 높은 열전도율로 인하여 현재 mechanical seal, nozzle, bearing, gas turbine blade, heat engine, 고온 열교환기, 항공 우주재료 등에 활용되고 있는 유망한 구조재료 중의 하나이다. 그러나 SiC 세라믹스는 87% 이상이 공유결합을 갖는 물질로서 입체에너지가 크고 입계간 물질이동이 어렵기 때문에 고밀도의 소결체를 얻

기가 어려운 것으로 알려져 있다<sup>1)</sup>. 이러한 난소결성을 해결하기 위하여 여러가지 소결방법이 연구되었는데 그 중에서도 소결조제 첨가 및 가압소결 방법이 가장 널리 쓰이고 있다<sup>2~12)</sup>. 소결 조제의 경우, 초기에는 B, C, Al, B<sub>4</sub>C, AlN 등을 첨가하여 비교적 고밀도의 SiC 소결체를 제조하였으나<sup>2~10)</sup>, 이러한 방법으로 제조된 SiC 세라믹스는 큰 입자크기로 인하여 파괴인성이 3~4 MPa·m<sup>1/2</sup> 정도로 매우 낮기 때문에 넓은 분야에서의 응용이 제한되고 있다.

최근에는 이러한 단점을 보완할 수 있는 새로운 산화물 계통의 소결조제가 개발되었는데 대표적인 것으로는  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  그리고 YAG(yttrium aluminum garnet :  $5\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{Y}_2\text{O}_3$ )를 들 수 있다<sup>4-12)</sup>. 이러한 산화물들은 소결시 SiC 표면에 존재하는  $\text{SiO}_2$ 와 화학반응을 일으켜 액상을 형성하기 때문에 SiC 입자들은 액상소결에 의하여 비교적 낮은 온도에서 치밀화가 이루어지게 된다<sup>5-7)</sup>. 그러나 산화물을 소결조제로 하여 SiC를 상압에서 소결할 경우, SiC와 산화물간의 반응에 의해 생성되는 성분이 소결온도에서 쉽게 휘발되기 때문에 표면부에서의 치밀화가 저해되는 것으로 알려져 있다<sup>11-14)</sup>. Mulla<sup>12)</sup> 등은 CO가스의 소결분위기를 이용하여  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 과  $\text{SiO}_2$  간의 반응을 억제하므로써 고밀도의 소결체를 얻은 바 있으며 Wei<sup>13,14)</sup> 등은 성형체를 packing powder로 밀봉하여 소결하므로써 시편 표면으로부터 소결 중 액상의 증발을 막아 밀도 향상을 이룰 수 있었다. 본 연구에서는 YAG를 소결조제로 첨가하여 액상소결로 제조된  $\beta$ -SiC 세라믹스에 있어서 소결 중 표면으로의 액상집중과 이러한 현상이 표면과 내부의 미세구조 발달에 미치는 영향을 고찰하였다.

## 2. 실험내용

본 연구에서 출발원료로 사용한 분말은 미세한  $\beta$ -SiC 분말(Showa Denko K.K., Japan; 97.2%)과 고순도 YAG 분말(High pure Chem. Co., Japan; 99.99%)을 사용하였다.  $\beta$ -SiC 분말에 1 mol%의 YAG 분말 및 결합재로 2 wt%의 PEG(polyethylene glycol; Wako Pure Chem. Ltd., Japan)를 에탄올과 함께 첨가한 다음, 20시간 ball milling 하였으며 80°C에서 전조하였다. 20 MPa 및 200 MPa의 압력으로 일축가압성형 및 정수압 성형으로 시편을 제조한 다음, 성형체를  $\alpha$ -SiC의 packing powder 내에 장입시켜 흑연도가니에 넣은 후 소결하였다. 소결은 아르곤가스 분위기 하의 탄소저항 발열로에서 1850°C로 1시간과 2시간 동안 각각 행하였으며, 승온 속도는 1750°C까지는 20°C/min로, 그 이후부터 1850°C 까지는 10°C/min으로 하였다.

소결 중 치밀화거동을 알아보기 위하여 고온 열팽창계수 측정기(high temperature dilatometer; Netzsch 402 e/7, FRG)를 사용하여 수축률을 측정하였으며, 아르카메데스 방법으로 밀도를 측정하였다. 소결시편의 미세구조는 열마 및 plasma 에칭(Rf Plasma Barrel Etcher PT7150, Biorad Laboratoric GmbH, Munich, FRG) 한 후 SEM 및 Image analyzer(Luzex III, Nileco Co.,

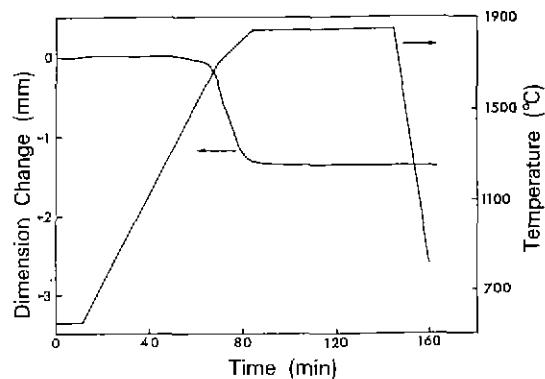


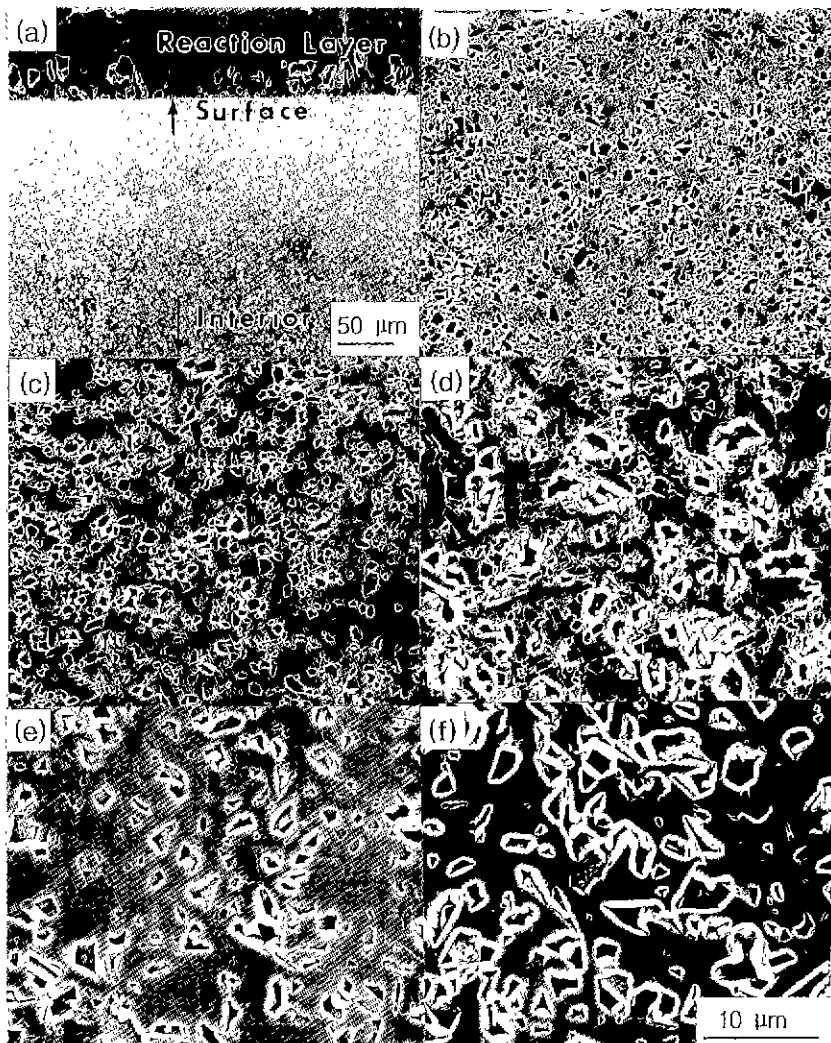
Fig. 1. Shrinkage curve of pressureless sintered  $\beta$ -SiC with 1 mol% YAG sintered at 1850°C for 1 h.

Japan)로 고찰하였다. 아울러 EDS, XRD를 사용하여 소결체 및 연마면의 성분석을 행하였으며 X-ray 정량분석을 통하여 SiC 다형 분석<sup>15)</sup> 및 소결도중 일어나는 상전이 거동을 살펴보았다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 1850°C에서 1시간 동안 소결한 시편의 수축 거동을 나타내었다. 그럼에서 보듯이 YAG를 소결조제로 첨가한  $\beta$ -SiC의 소결에서 치밀화가 약 1600°C 이상의 온도에서 급격히 진행되는 것으로 미루어 이 온도에서부터 액상의 형성이 시작되는 것으로 보인다. 이러한 액상 형성온도는 YAG의 용융온도(1940°C)보다 매우 낮은 온도로서 이때 생성되는 액상의 조성은 YAG(또는  $\text{Al}_2\text{O}_3$  or  $\text{Y}_2\text{O}_3$ )과 SiC의 표면에 존재하는  $\text{SiO}_2$ 간의 반응에 의해 생성된 액상으로 추측된다.  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ 계의 공용온도는 각각 1587°C 및 1650°C로 알려져 있는데<sup>16-18)</sup>, 보고된 바에 의하면 산화물이 소결조제로 첨가된 SiC 및  $\text{Si}_3\text{N}_4$ 의 경우, 상용분말의 입자 표면에 흔히 생성되는  $\text{SiO}_2$ 가 소결온도 및 밀도에 큰 영향을 미치는 것으로 알려져 있다<sup>19-21)</sup>.

소결시편의 밀도와 중량감소를 측정한 결과, 밀도는 1시간 소결시편에서는  $2.77 \text{ g/cm}^3$ 이었으며, 2시간 소결시편에서는  $2.90 \text{ g/cm}^3$ 으로 증가하였다. 반면에 중량감소는 1시간 소결시편에서 6.5 wt%였으며, 2시간 소결시편에서는 7.3 wt%로 증가하였다. 다른 실험결과에 비하여<sup>22,23)</sup> 밀도가 비교적 낮게 나타난 것은 낮은 소결온도 및 첨가된 소결조제의 양이 적기 때문인 것으로 판단되었다. 소결시간에 따라 밀도의 증가와 더불어 중량감소가 증가한 것은 산화물과 SiC와의 반응에 의해 증기



**Fig. 2.** Microstructural changes from the surface region to the interior in pressureless-sintered SiC at 1850°C for 1 h; (a) surface reaction layer and the surface region, (b) the top area of surface region, (c)~(e) intermediate areas of surface region, and (f) the interior.

압이 낮은 성분들이 생성되어 소결도중 휘발하기 때문인 것으로 알려져 있다. Mulla와 Krstic<sup>10</sup>은 본 실험과 유사한 조건에서 중량감소를 관찰한 바 있는데, 소결조제 산화물 중  $Y_2O_3$ 에 대한  $Al_2O_3$  함량이 클수록 중량감소가 증가하며  $SiO$ ,  $Al_2O$ ,  $CO$  성분의 휘발이 중량감소의 주 원인이 된다고 보고하였다.

Fig. 2는 1시간 소결한 시편을 수직방향으로 절단한 후 연마하여 시편표면으로부터 내부까지 미세조직을 관찰한 SEM 사진으로서, Fig. 2(a)에서 보듯이 시편 표면에는 약 80  $\mu m$  두께의 새로운 반응층이 형성되어 있었다.

이러한 반응층은 packing powder가  $SiO$ ,  $Al_2O$ ,  $CO$  성분의 휘발을 억제하기 때문에 생성되는 것으로 판단되는데, 반응층의 성분을 EDS로 고찰한 결과(Fig. 3(a))  $Al$ 과  $Si$ 만 고찰되었으며, XRD 분석에서는 mullite상인 것으로 판찰되었다. 이러한 반응층을 형성하는 mullite상 입자는 시편표면에서 길쭉한 형상(elongated grain)의 특정방향으로 성장하였으며, 반응층과 시편의 경계면에는 큰 기공이 존재하고 mullite상 입자크기도 경계면에 가까울 수록 감소하였다<sup>24</sup>. Wei와 Lee<sup>13,14</sup> 등은 SiC-AlN 복합체의 상입소결 시 packing powder를 사용하여 액상

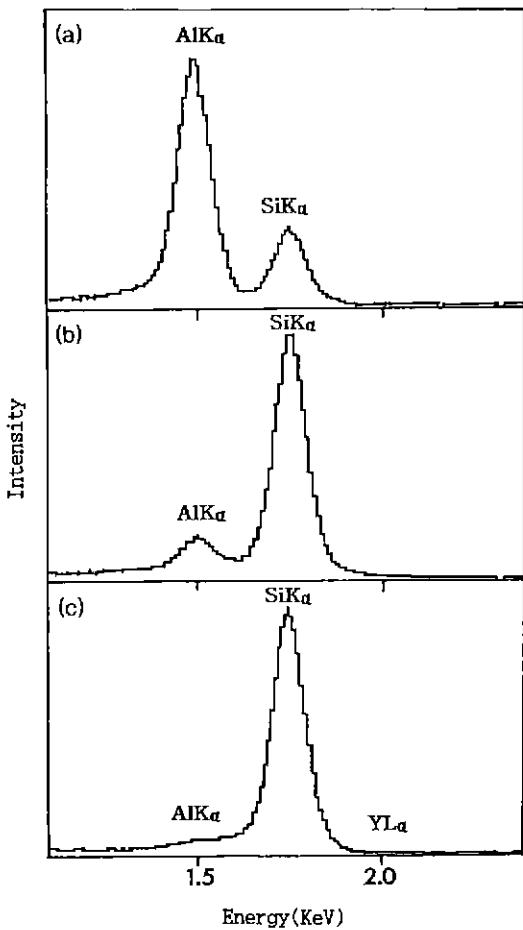


Fig. 3. EDS analysis in (a) the reaction layer, (b) the top area of surface region, and (c) the interior as shown in Fig. 3.

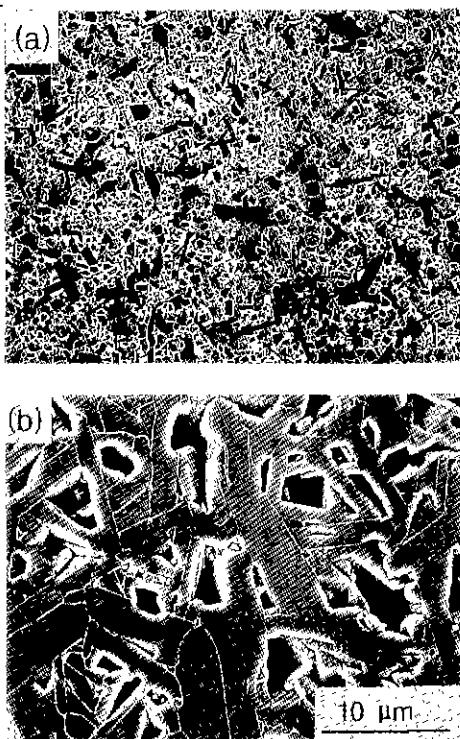
성분의 휘발을 크게 줄인 연구결과를 보고한 바 있는데, 본 실험에서 관찰된 결과로 미루어 소결 중 형성되는 새로운 반응층이 휘발성분을 억제하기 때문에 중량감소가 줄고 밀도증가가 이루어진 것으로 판단된다.

Fig. 2의 (b)부터 (f)까지는 시편의 표면부 부터 내부로 진행하면서 미세조직을 관찰한 사진인데, 같은 시편일지라도 소결체의 표면과 내부의 미세조직이 크게 다른 것을 확인할 수 있다. 표면부의 경우 Fig. 2(b)에서 보듯이 입자크기가 작고 대부분 구형을 나타내었으며, 내부에 비해 치밀한 조직을 나타내었다. 반면에 내부로 진행할 수록 입자크기가 커지고 모양도 주상이나 판상을 나타내고 있으며, 기공의 크기 및 양이 증가하였다. 시편의 표면부와 내부에서 EDS 분석을 행하여 조성을 비교해 본 결과(Fig. 3(b) and (c)), 내부에 비하여 표면부에서 Al

성분이 많이 검출되는 것으로 미루어 표면부에 액상조성이 집중되어 있는 것을 알 수 있다. 산화물을 첨가하여 상압소결한 SiC 시편에 있어서 액상성분이 내부에서보다 표면부에서 많이 관찰되는 현상이 보고된 바 있으니<sup>[4,25]</sup>, 아직까지 그 기구는 명확하지 않다.

일반적으로 액상소결에서는 소결 중 액상의 이동이 기공의 치밀화와 연관되어 일어나는 것으로 보고된 바 있으니<sup>[26,27]</sup>, 본 실험에서는 소결 후 얻어진 시편의 밀도가 낮기 때문에 이러한 기구와는 관계가 적을 것으로 추측된다. 따라서 산화물이 첨가된 SiC 액상소결에서 액상이 소결도중 표면에 집중되는 것은 앞에서 언급하였듯이 휘발성분의 생성과 연관이 있을 것으로 보인다. 즉, 소결중 SiC와 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 반응에 의해 생성된 SiO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>상은 휘발성이 강하기 때문에 시편의 내부에서 표면부로 이동하려는 구동력을 갖는다. 그러나 시편의 표면은 packing powder로 둘러싸여 있기 때문에 일부분 만이 휘발되고 대부분의 액상은 SiC 입자사이에 존재하게 된다. SiC-YAG 또는 SiC-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 계의 경우 입성장 기구가 확산체여인지 반응체여인지 정확히 일치된 보고는 없지만 SiC-YAG 계에서 액상성분인 YAG를 적게 첨가하면 입성장 속도가 큰 것으로 미루어 확산체여에 의한 입성장 기구가 타당할 것으로 판단된다(그러나 보다 명확한 결론을 얻기 위해서는 액상의 조성변화나 액상량 변화에 대한 정량분석이 필요할 것으로 사료된다). 따라서 Fig. 2에서와 같이 표면부와 내부 간에 미세구조가 다른 것은 SiC 입자사이에 존재하는 액상량의 차이에 의해 일어나는 것으로 믿어진다. 본 연구의 경우 시편의 미세조직 변화는 표면으로부터 약 250 μm의 깊이에 걸쳐 진행되었으며, 이와같이 미세조직이 변화하는 두께는 액상의 조성이나 액상량, 소결조건에 의해 달라질 것으로 예상된다<sup>[25]</sup>.

소결시간이 2시간으로 증가하게 되면 표면부와 내부 간의 미세조직은 1시간 소결한 시편에 비하여 더욱 차이를 나타나게 되는데, Fig. 4에는 2시간 소결한 시편의 표면부와 내부의 미세조직을, 그리고 Table 1에는 SEM 사진으로부터 측정한 입자크기 및 aspect ratio를 나타내었다. 그럼에서 보듯이 1시간 소결시편과 마찬가지로 표면부는 비교적 치밀하였으나 내부는 기공과 입자크기가 매우 커졌으며, 반면에 표면부에는 1시간 소결 시편에서 보이지 않던 주상 또는 판상입자가 관찰되었다. 또한 Table 1에서 보면 표면부 보다 내부에서 입성장 속도가 매우 빠른 것을 알 수 있으며, 너비(maximum width)보다는 길이(maximum length) 방향으로의 입성장 속도가 더 큰 것도 관찰할 수 있다. β-SiC의 소결에 있어서 입

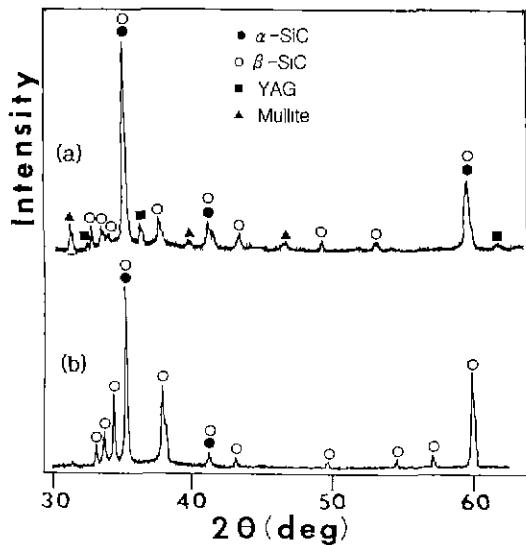


**Fig. 4.** Scanning electron micrographs of SiC specimen sintered at 1850 for 2 h in the (a) top area of surface region and (b) interior.

**Table 1.** Grain Size and Aspect Ratio in the Top Area of Surface Region and the Interior of the SiC Specimens Sintered at 1850°C.

Sintering time (h)	Region	Mean grain size ( $\mu\text{m}$ )	Mean maximum length ( $\mu\text{m}$ )	Mean maximum width ( $\mu\text{m}$ )	Aspect ratio
1	surface	0.73	0.97	0.63	1.60
	interior	1.06	1.81	0.80	2.41
2	surface	1.00	1.46	0.91	1.73
	interior	2.04	3.86	1.68	2.73

자형은 상변태와 밀접한 관련이 있는데<sup>28</sup>  $\beta$ -SiC로부터 상변태가 일어난  $\alpha$ -SiC의 경우 주상(rod-like shape) 또는 판상(plate-like shape)으로 성장하고, 반면에 상변태가 일어나지 않은  $\beta$ -SiC의 경우 등방형 형태(equi-axed shape)로 성장하게 된다.



**Fig. 5.** X-ray diffraction patterns of SiC specimen sintered at 1850 for 2 h in the (a) top area of surface region and (b) interior.

한편 Fig. 4에서는 core-rim 구조가 화살표로 나타낸 바와 같이 표면과 내부에서 동시에 관찰된다. Sigl와 Kleebe<sup>29</sup>에 의해 보고된 core-rim 구조는 액상소결의 주 과정인 용해-재석출의 증거로 제시되었으며, 이러한 구조는 원래의 입자인 core에 비해 소결시 성장한 rim에 Al 성분이 미량 포함되어 플라즈마 애칭시 애칭속도가 달라지기 때문에 나타나게 된다.  $\alpha$ -SiC를 출발물질로 액상소결할 경우 입자가 등방형으로 성장하기 때문에 rim의 두께는 모든 방향에서 비슷한 크기로 관찰되었으나  $\beta$ -SiC를 출발물질로 한 본 연구에서는 입자가 주상 또는 판상으로 성장함에 따라 rim의 두께가 길이방향에서는 크고 너비방향에서는 작게 나타났으며, 반면에 core의 경우에는 대부분 동근 모양의 형태를 나타냄을 알 수 있었다.

Fig. 5에는 2시간 소결한 시편의 표면부와 내부에서 분석한 XRD 피크를 나타내었다. 표면부의 경우 SiC 외에도 YAG상과 mullite 상이 관찰되었으며, SiC 피크를 분석한 결과 초기 분말상인  $\beta$ -SiC가 40%이고 상변태가 진행된  $\alpha$ -SiC는 60%였다. 반면에 내부의 경우 SiC 피크만 관찰되었으며, 약 90%의  $\beta$ -SiC가  $\alpha$ -SiC로 상변태되었다. 따라서 SiC 입자간에 존재하는 액상량은 입자의 성장속도 뿐만 아니라 상변태 속도에도 영향을 미치며, 이러한 영향은 액상과 SiC 입자표면 간에 존재하는 계면에너지 크기에 의존할 것으로 사료되었다.

#### 4. 결 론

YAG를 첨가하여 액상소결로 제조된 SiC 세라믹스에 있어서 소결 중 표면부으로의 액상집중과 이러한 현상이 표면과 내부의 미세구조 발달에 미치는 영향을 고찰한 결과, 소결 후 표면 위에는 mullite 조성을 갖는 새로운 반응층이 약 80  $\mu\text{m}$ 의 두께로 생성되었으며, 이러한 반응층은 액상의 증발을 억제하여 시편 표면부에 액상의 집중을 유도하였다. 시편의 표면부와 내부간에는 액상량의 차이로 인하여 미세구조의 차이가 나타났으며, 표면으로 부터 약 250  $\mu\text{m}$ 의 깊이에 걸쳐 미세구조가 점진적으로 변화하였다. 표면은 내부에 비하여 기공이 적고 치밀하였으며 입성장과 상변태가 억제되었다. 이에 따라 표면은 입자가 작고 구형의 입자형태를 나타낸 반면에 내부에서는 입자크기가 크고 상변태 및 입성장에 의한 주상이나 평판상의 입자가 발달하였다. 표면부와 내부의 입자에서 core-rim 구조가 관찰되었으며 core의 모양과 크기는 표면부와 내부간에 큰 차이를 보이지 않은 반면에, rim의 크기는 모양은 입자의 크기와 형태에 의존하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국과학재단 산하 재료계면공학 연구센터의 지원으로 이루어진 것으로 이에 감사를 드립니다.

#### REFERENCES

1. Y. Inomata, "Crystal Chemistry of Silicon Carbide," Silicon-Carbide Ceramics, Ed. by S. Somiya and Y. Inomata, Uchida Rokakuho Publishing Ltd., Tokyo, pp. 1-8 (1988)
2. W. Bocker and H. Hausner, "The Influence of Boron and Carbon Additions on the Microstructure of Sintered Alpha Silicon Carbides," *Powder Metall. Int.*, **10**, 87-89 (1978).
3. W. Bocker, H. Landermann, and H. Hausner, "Sintering of Alpha Silicon Carbide with Additions of Aluminum," *Powder Metall.*, **11**, 83-85 (1979).
4. K. Negita, "Effective Sintering Aids for Ceramics: Reactivity of with Various Additives," *J. Am. Ceram. Soc.*, **69**, C308-C310 (1986).
5. L. Cordrey, D.E. Niezs, and D.J. Shanefield, "Sintering of Silicon Carbide with Rare Earth Oxide Additions," *Ceram. Trans.*, **7**, 618-636 (1990).
6. M. Omori and H. Takei, "Pressureless Sintering of SiC," *J. Am. Ceram. Soc.*, **65**, C92 (1982).
7. M. Omori and H. Takei, "Preparation of Pressureless-sintered SiC-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *J. Mater. Sci.*, **23**, 3744-3749 (1988).
8. K. Suzuki and M. Sasaki, "Pressureless Sintering of Silicon Carbide," Fundamental Structural Ceramics, Ed. by S. Somiya and R.C. Bradt. Terra Scientific Publishing Company, Tokyo, pp. 75-85 (1987).
9. N.P. Padture, "In Situ-Toughened Silicon Carbide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 519-523 (1994).
10. N.P. Padture and B.R. Lawn, "Toughness Properties of a Silicon Carbide with an In Situ Induced Heterogeneous Grain Structure," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 2518-2522 (1994).
11. M.A. Mulla and V.D. Krstic, "Low Temperature Pressureless Sintering of  $\beta$ -Silicon Carbide with Aluminum Oxide and Yttrium Oxide Additions," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **70**, 439-443 (1991).
12. M.A. Mulla and V.D. Krstic, "Pressureless Sintering of  $\beta$ -SiC with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Additions," *J. Mater. Sci.*, **29**, 934-938 (1994).
13. W.C. Wei and R.R. Lee, "Pressureless Sintering of AlN-SiC Composites," *J. Mater. Sci.*, **26**, 2930-2936 (1991).
14. R.R. Lee and W.C. Wei, "Fabrication, Microstructure, and Properties of SiC-AlN Ceramic Alloys," *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, **11**, 1094-1121 (1990).
15. H. Tanaka and N. Iyi, "Simple Calculation of SiC Polytype Contents from Powder X-ray Diffraction Peaks," *J. Ceram. Soc. Japan*, **101**, 1313-1314 (1993).
16. T.I. Mah and M.D. Petry, "Eutectic Composition in the Pseudobinary of Y<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>7</sub> and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**, 2006-2009 (1992).
17. F.J. Klug, S. Prochazka and R.H. Doremus, "Alumina-Silica Phase Diagram in the Mullite Region," *J. Am. Ceram. Soc.*, **70**, 750-759 (1987).
18. T.R. Dinger, R.S. Rai and G. Thomas, "Crystallization Behavior of a Glass in the Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-AlN System," *J. Am. Ceram. Soc.*, **71**, 236-244 (1988).
19. R.M. Williams, B.N. Juterbock, S.S. Shinohzaki, C.R. Peters, and T.J. Whalen, "Effect of Sintering Temperatures on the Physical and Crystallographic Properties of  $\beta$ -SiC," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **64**, 1385-1389 (1985).
20. J.K. Lee, H. Tanaka and S. Otani, "Preparation of SiC-AlN Composites by Liquid-Phase Sintering and Their Microstructure," *J. Ceram. Soc. Japan*, **103**, 873-877 (1995).
21. N. Hirosaki, A. Okada and M. Mitomo, "Effects of Oxide addition on the Sintering and high-temperature Strength of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> Containing Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *J. Mater. Sci.*, **25**, 1872-1876 (1990).
22. M.A. Mulla and V.D. Krstic, "Mechanical Properties of  $\beta$ -SiC Pressureless Sintered with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Additions,"

- Acta Metall. Mater., **42**, 303-308 (1994).
23. 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).
24. J.K. Lee, H. Tanaka and H. Kim, "Microstructural Changes in Liquid-Phase Sintered  $\alpha$ -Silicon Carbide," Materials Letters, in press.
25. M. Omori, A. Sakuma, and T. Hirai, "SiC Sintered Composite with  $Y_2O_3$  and  $Al_2O_3$ ," Ceramics Today-Tomorrow's Ceramics, Ed. by P. Vincenzini, Elsevier Science Publ., The Netherlandsishers, pp. 1327-1335 (1991).
26. H.H. Park, S.J. Cho and D.N. Yoon, "Pore Filling Process in Liquid Phase Sintering," Met. Trans., **A15**, 1075-1080 (1984).
27. O.J. Kwon and D.N. Yoon, "The Liquid Phase Sintering of W-Ni," Sintering Process Ed. by G.C. Kuczynski, Plenum, New York, pp. 203-218 (1980).
28. S.K. Lee, and C.H. Kim, "Effects of  $\alpha$ -SiC Versus  $\beta$ -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).
29. L.S. Sigl and H.J. Kleebe, "Core/Rim Structure of Liquid-Phase-Sintered Silicon Carbide," J. Am. Ceram. Soc., **76**, 773-776 (1993).