



## تأثیر افزودنی نانو کربن بلک بر تحولات فازی و خواص رئولوژی دیرگدازهای ریختنی آلومینا-سیلیکون کاربید

محمدحسن امین<sup>۱</sup>، محسن امین ابراهیم آبادی<sup>۲</sup>، تورج عبادزاده<sup>۱</sup>، ثانی عابدینی<sup>۳</sup>، حسین رفیع زاده<sup>۳</sup> و سیدکاظم تدین اسلامی<sup>۳</sup>

پژوهشکده سرامیک، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران  
[m-amin@merc.ac.ir](mailto:m-amin@merc.ac.ir)

### چکیده

در کار حاضر که برای اولین بار در دنیا مطرح می شود، تأثیر درصد های مختلف افزودنی (صفر تا بیست درصد وزنی) پودر کربن بلک در ابعاد نانومتری بر تحولات فازی و خواص رئولوژی جرم های آلومینا-سیلیکون کاربید بررسی شد. نتایج نشان دادند که حضور مقادیر کم کربن بلک به عنوان افزودنی، باعث کاهش درصد خودجاری بودن جرم می شود. در حالی که افزایش بیشتر افزودنی کربن بلک نانومتری به نمونه، منجر به افزایش جریان یابی می شود. همچنین در حضور افزودنی کربن بلک، زمان کارپذیری و تخلخل ظاهری جرم ریختنی تا حدی افزایش یافته و دانسیته بدنه پس از پخت کاهش قابل توجه خواهد داشت. مطالعات فازی نشان داد که با افزایش کربن بلک به سیستم، هیچ گونه تحول فازی قابل تشخیصی مشاهده نمی شود و تنها بر شدت پیک های مربوط به فاز SiC افزوده می شود.

واژه های کلیدی: نانو کربن، دیرگداز ریختنی، آلومینا، سیلیکون کربید، کربن.

<sup>۱</sup> - عضو هیات علمی - دکترای مهندسی مواد

<sup>۲</sup> - کارشناس - کارشناس مهندسی مواد (سرامیک)

<sup>۳</sup> - کارشناس - شرکت ذوب آهن اصفهان



## ۱- مقدمه

مواد دیرگداز در صنایع مختلف کاربردهای زیادی داشته و به عنوان گلوگاه تکنولوژی بسیاری از صنایع مادر مطرح هستند. صنعت آهن و فولاد از مهمترین صنایع مصرف کننده این فراورده ها می باشند به طوری که بیش از هفتاد درصد مصرف مواد دیرگداز را به خود اختصاص داده اند [۱]. در بین دیرگدازها، مواد دیرگداز حاوی کربن در صنایع امروز جایگزینی ندارند. بزرگترین مصرف کننده این گروه محصولات، صنایع فولادسازی هستند. انواع دیرگدازهای حاوی کربن در اشکال مختلف در صنایع فولادسازی مورد استفاده قرار می گیرند.

در سال های اخیر، توسعه و گسترش استفاده از دیرگدازهای بی شکل (منولیتیک) به ویژه جرم های ریختنی یکی از مهم ترین دلایل کاهش مصرف ویژه دیرگدازها بوده است. جرم های ریختنی یا بتن های دیرگداز مخلوطی پیچیده از اجزای مختلف، شامل سیمان آلومینایی (سیمان دیرگداز)، پرکننده ها، مواد خیلی ریز و افزودنی می باشد. مکانیزم عملکرد این جرم ها بدین صورت است که در اثر واکنش آب با بایندر هیدرولیک، در دمای پایین، جرم ریختنی استحکام اولیه لازم را کسب نموده و با بالا رفتن دما این اتصال هیدرولیکی به اتصال سرامیکی تبدیل گشته و خواص کاری لازم جهت دماهای بالا را فراهم می سازد.

یکی از مهم ترین انواع دیر گدازهای بی شکل، دیرگدازهای ریختنی است. منابع نشان می دهند که دیرگدازهای ریختنی دارای آلومینات کلسیم برای اولین بار در سال ۱۸۵۶ ابداع شدند، یعنی زمانی که H.S.C.DEVILLE برای اولین بار بوتله های دیر گدازی را با استفاده از سنگ دانه های آلومینا و سیمان دیرگداز تهیه کرد [۲]. اما تولید صنعتی این نوع دیر گدازها همزمان با تولید صنعتی سیمان آلومینات کلسیم در سال ۱۹۲۹ در آمریکا و در سال ۱۹۳۹ در ژاپن شروع گردید. دیرگدازهای ریختنی دارای اتصال سیمان آلومینات کلسیم با تاریخچه تقریباً ۷۰ ساله به مرور زمان از ترکیب های معمولی دارای سیمان زیاد تا کم سیمان و خیلی کم سیمان وهمچنین از روش نصب نوسانی تا سیستم های خود جاری توسعه و پیشرفت زیادی داشته اند [۳ و ۴].

دیرگدازهای با سیستم  $Al_2O_3-SiC-C$  به عنوان پوششی مجرا برای اولین بار در ژاپن ارائه گردید. آلومینای زینتر شده یا فیوز شده عموماً به جهت مقاومت در برابر خوردگی و سایش و  $SiC$  و کربن بخاطر پایداری حجمی و جلوگیری از پوسته شدن و مقاومت به خوردگی سرباره در این دیرگدازها استفاده می شوند. درصدهای بهینه اجزاء تشکیل دهنده در مواد دیرگداز بسته به محل و شرایط کاربرد متفاوت است. به عنوان نمونه، مواد دیرگداز پوشش مجراها شامل حدوداً ۱۵ تا ۲۵ درصد  $SiC$ ، ۶۰ تا ۷۰ درصد  $Al_2O_3$  و یک تا ۸ درصد کربن گزارش شده است [۵].



استفاده از کربن و گرافیت در دیرگدازها به این دلیل است که کربن قابلیت تر کنندگی کمی توسط سرباره دارد. در واقع کشش سطحی بین کربن و سرباره کم است، لذا سرباره نمی تواند به راحتی دیرگدازهای حاوی کربن را تر کند. بنابراین نفوذ پذیری سرباره و در نتیجه خوردگی دیرگداز کاهش می یابد [۶]. همچنین کربن بدلیل قابلیت هدایت حرارتی مطلوبی که از خود نشان می دهد، مقاومت به شوک پذیری دیرگدازها را بهبود می بخشد. پس از معرفی این سیستم، بر روی باندهای سیلیکاتی و رزینی در این سیستم پژوهش های زیادی انجام گرفته است. بنا به دلایل متعدد از جمله ضعیف بودن مقاومت به شوک حرارتی و مقاومت در برابر خوردگی، گرایش عمومی به سمت ایجاد باندهای کربنی (رزینی) بیشتر بوده است.

در کار حاضر که برای اولین بار در دنیا مطرح می شود، سعی شده است که استفاده از مقادیر مختلف افزودنی پودر کربن بلک در ابعاد نانومتری در بدنه مورد ارزیابی قرار گرفته و پاسخ های برای پرسش های موجود در محافل علمی در این زمینه بیابد. به علاوه، انتظار می رود که بتوان با جایگزینی گرافیت به وسیله نانو ذرات کربن بلک، ضمن حفظ مقاومت به خوردگی و شوک حرارتی این دیرگدازها، از میزان کربن مورد نیاز کاسته و در نتیجه طول عمر آن ها افزایش یابد.

## ۲- فعالیت های تجربی

در کار حاضر، عملکرد کربن بلک نانومتری به صورت افزودنی بر خواص جرم ریختنی  $Al_2O_3-SiC-C$ ، نظیر جریان یابی، زمان کارپذیری، درصد تخلخل، چگالی و تحولات فازی جرم ریختنی  $Al_2O_3-SiC-C$  در حضور مقادیر مختلف افزودنی نانوذرات کربن بلک از صفر تا ۱۰ درصد وزنی مورد ارزیابی قرار گرفت. مواد اولیه اصلی شامل یک نوع آلومینای تبولار با مشخصه Alfa-tab-30 ساخت شرکت Silkem کشور اسلوانی، کاربید سیلیسیم با مشخصه EC6-F220 ساخت شرکت Treibacher کشور اتریش، آلومینای فعال شده<sup>۴</sup> با مشخصه PFR 20 ساخت شرکت Pechiney کشور فرانسه، میکروسیلیس با مشخصه Elkem 971 U ساخت شرکت Elkem کشور نروژ، سیمان آلومینا بالا با مشخصه Secar 71 ساخت شرکت Lafarge کشور فرانسه، گرافیت پولکی<sup>۵</sup> ساخت شرکت Great Wall Group کشور چین، پودر کربن بلک داخلی تولیدی شرکت کربن ایران با نام تجاری V 6 و شماره استاندارد ASTM - N-220 و الیاف پلیمری تولیدی شرکت Fibertech می باشد. خصوصیات و ترکیب شیمیایی مواد مورد استفاده که بوسیله آنالیز شیمی تر تعیین شده، در جدول های (۱) تا (۴) ارائه شده است با توجه به کار های تحقیقاتی قبلی [۹-۷]، که بالاترین میزان عامل کربنی به کار رفته در ساخت جرم ها به میزان ۴ درصد وزنی بصورت گرافیت گزارش شده است، در کار حاضر، ۲ درصد گرافیت همراه با افزودنی کربن بلک جهت استفاده در ترکیب جرم ریختنی در نظر گرفته

<sup>4</sup> - Reactive Alumina

<sup>5</sup> - Flake Graphite



شد. همچنین با توجه به اینکه در به کارگیری مدل آندریازن اصلاح شده برای جرم‌های لرزه روان استفاده از  $0.30 < q < 0.28$  توصیه شده [۱۰]، در تحقیق حاضر مقدار  $q=0.28$  و  $dm$  برابر با  $0.1$  میکرومتر در نظر گرفته شد. فرمولاسیون پایه جرم مطابق جدول (۵) در نظر گرفته شد.

جدول ۱: آنالیز شیمیایی مواد اولیه مورد استفاده (درصد وزنی)

Fe Magnetic	Free Carbon	SiC	CaO	Na <sub>2</sub> O	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Si+SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ترکیب شیمیایی
<0.025	-	-	0.020	0.400	0.080	0.050	99/400	آلومینای تبلار
-	<0.060	97/50	-	-	0.050	1/25	0.15	کاربید سیلیسیم (SiC)
-	-	-	0.02	0.05	0.01	0.08	99/84	آلومینای فعال شده
-	<0.06	-	<0.02	0.05	<0.02	97/8	<0.05	میکروسیلیس
-	-	-	28/5		0.04	0.8	70/3	سیمان آلومینا بالا

جدول ۲: خصوصیات گرافیت پولکی مورد استفاده

خاصیت	کربن	رطوبت	مواد فرار	خاکستر
درصد وزنی	94/48	0.02	1/60	3/90

جدول ۳: آنالیز شیمیایی خاکستر گرافیت پولکی مورد استفاده

Total Fe	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SiO <sub>2</sub>	MgO	CaO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ترکیب شیمیایی
17/81	1/37	0/79	50/20	7/67	5/06	17/10	درصد وزنی

جدول ۴: چگالی مواد اولیه استفاده شده

ماده اولیه	آلومینای تبلار	کاربید سیلیسیم	گرافیت پولکی	آلومینای فعال شده	میکرو سیلیس	سیمان آلومینا بالا	چگالی (g/cm <sup>3</sup> )
	3/55	3/10	1/80	3/92	2/20	2/93	

جدول ۵: ترکیب شیمیایی پایه جرم ریختنی مورد استفاده

ترکیب شیمیایی	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiC	C	SiO <sub>2</sub>	افزودنی های دیگر
درصد وزنی	75	16	2	5	2



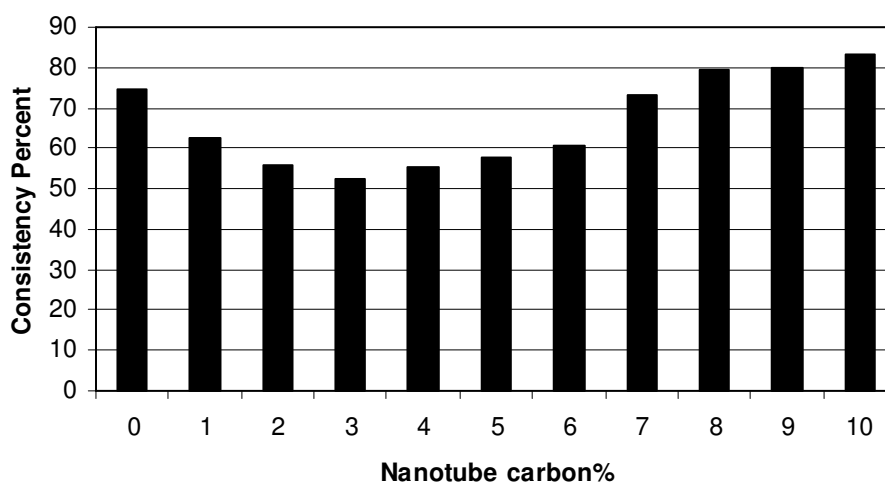
تعیین جاری شونده جرم ریختنی، مطابق با استاندارد ملی ایران شماره ۶۷۳۱ و زمان کارپذیری با روش استاندارد ISIRI 6731 انجام گرفت. چگالی و تخلخل بدنه‌ها به روش ارشمیدس مطابق با استاندارد ASTM C20-87(1997) محاسبه شد [۱۱]. جهت تعیین نسبت آب به جامد مناسب، همزمان از روش های آزمون گلوله در دست مطابق با استاندارد ISIRI -6730 و میز جریان مطابق با استاندارد ISIRI -6732 استفاده شد.

شناسایی فازها به روش پراش اشعه ایکس (XRD) توسط دستگاه PW3710 محصول شرکت Philips تحت اختلاف پتانسیل ۴۰kv و جریان ۳۰mA به وسیله اشعه  $Cu K\alpha$  در زوایای ۵ تا ۷۵ درجه انجام شد.

### ۳- نتایج و بحث

بر اساس آنالیز BET، سطح ویژه کربن بلک مورد استفاده  $102m^2/g$  می باشد، همچنین مطالعات ریزساختاری نشان می دهد که میانگین قطر ذرات کربن بلک ۲۵۹ نانومتر می باشد.

نتایج مربوط به تعیین درصد جریان یابی جرم ریختنی  $Al_2O_3-SiC-C$  در حضور مقادیر از صفر تا ۱۰ درصد وزنی کربن بلک نانومتری، در شکل (۱) نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می شود با افزایش درصد افزودنی کربن بلک نانومتری، جریان یابی جرم ریختنی ابتدا کاهش و سپس افزایش می یابد.



شکل ۱: درصد جریان یابی جرم ریختنی در حضور مقادیر مختلف کربن بلک نانومتری

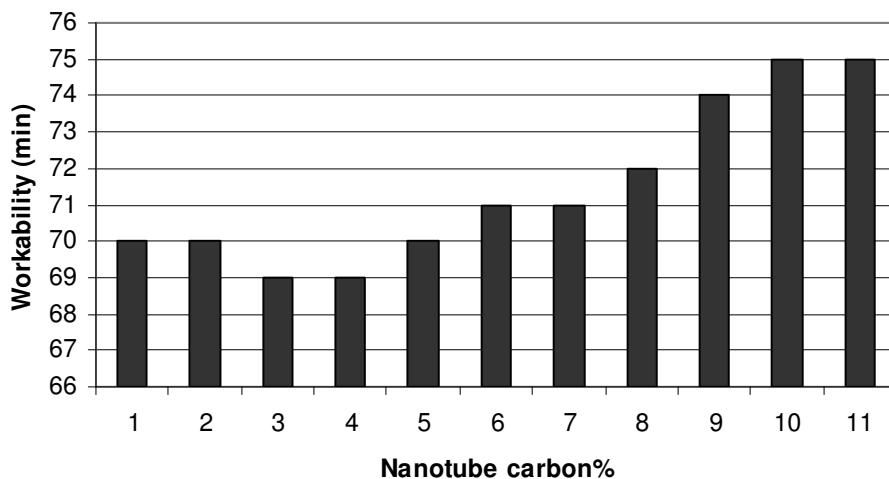
به نظر می رسد که افزایش مقادیر کم کربن بلک باعث کاهش درصد خودجاری بودن جرم می شود به طوری که جرم در حضور ۴ درصد افزودنی کربن بلک، کمترین میزان خودجاری بودن را داراست. این پدیده را

<sup>6</sup> - X-ray Diffraction



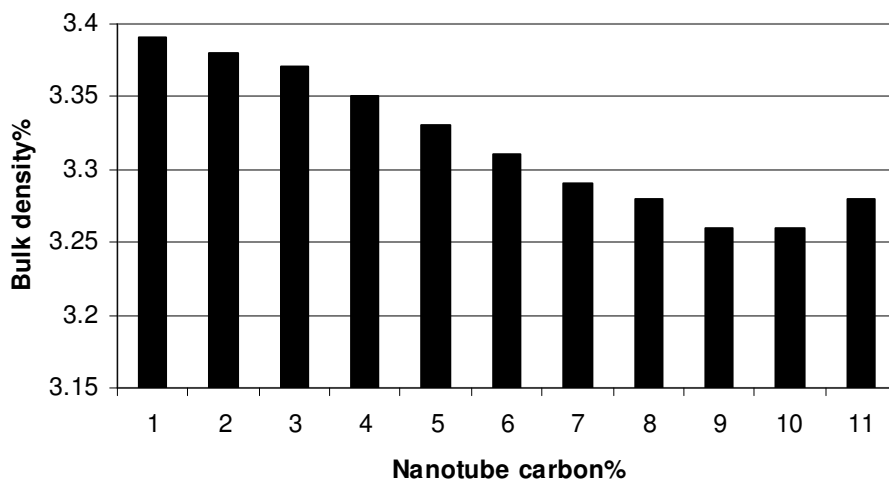
می توان به کاهش نسبی درصد دفلوکولانت در کل بدنه در نتیجه حضور افزودنی نسبت داد. اما در همین حال، با افزایش درصد افزودنی کربن بلک نانومتری، توزیع اندازه ذرات جرم ریختنی بسمت ذرات ریزتر گسترش داده می شود. بنابراین کربن بلک نقش پرکنندگی را ایفا می کند و بطور نظری انتظار می رود که اگر ذرات تشکیل دهنده دیرگداز ریختنی بطور کامل فشرده شوند، میزان آب مورد نیاز جهت نصب به حداقل برسد. این دو عامل در رقابت با یکدیگر هستند، در حضور مقادیر بالاتر افزودنی کربن بلک، عامل دوم نقش عمده تری داشته و به دلیل اینکه کربن بلک نانومتری، فضاهای خالی بین ذرات درشت را پر می کند، جریان یابی افزایش می یابد. ذرات درشت آلومینای تبولار که به شکل ورقه ای شکل بوده و دارای لبه های تیز هستند، نمی توانند به راحتی روی هم بلغزند، در صورتی که ذرات ریز کربن بلک این امکان را به وجود می آورد که به عنوان یک عامل مثبت (سرسره)، نقش کاهش دهنده اصطکاک و روغن کاری بین ذرات آلومینای تبولار و دیگر اجزای سیستم که دارای لبه های تیز هستند را ایفا کند. همچنین به علت ریز دانه بودن و جذب آب زیاد، یک لایه آب در اطراف هر ذره کربن بلک ایجاد می شود که این امر خاصیت روغن کاری را بیشتر می کند، چون آب به عنوان مایعی که خاصیت روغن کاری کننده دارد، مطرح می باشد. در حضور کربن بلک، درصد بالای آب باعث جدایش نشده، بلکه باعث بهبود خواص جریان یابی می گردد زیرا درصد بالای آب در اطراف ذرات کربن بلک احاطه می شود. جدایش ناشی از درصد بالای آب، به خاطر فاصله انداختن بین اجزای سیستم و جدایش ذرات به علت اختلاف وزن مخصوص می باشد.

نتایج مربوط به تعیین زمان کارپذیری جرم ریختنی  $Al_2O_3-SiC-C$  در حضور مقادیر از صفر تا ۱۰ درصد وزنی کربن بلک نانومتری، در شکل (۲) نشان داده شده است. همانطور که در این شکل می توان مشاهده کرد، زمان کارپذیری جرم ریختنی با افزایش درصد افزودنی کربن بلک تا حدی افزایش می یابد. دلیل اصلی افزایش کارپذیری جرم دیرگداز، را می توان به لغزندگی بهتر جرم ریختنی در حضور افزودنی کربن بلک نسبت داد. همچنین درصد آب بالاتر باعث بهبود کارپذیری می شود زیرا آب در سیستم باقی مانده و به جرم این فرصت را می دهد که کارپذیری خود را حفظ کند.

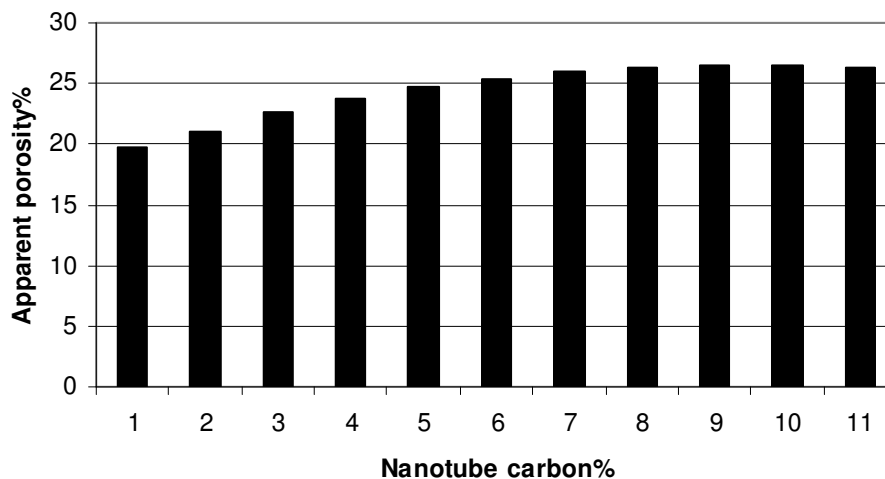


شکل ۲: زمان کارپذیری جرم ریختنی در حضور مقادیر از صفر تا ۱۰ درصد وزنی کربن بلک نانومتری

نتایج مربوط به اندازه‌گیری چگالی و درصد تخلخل جرم ریختنی  $Al_2O_3-SiC-C$  در حضور مقادیر از صفر تا ۱۰ درصد وزنی کربن بلک، به ترتیب در شکل‌های (۳) و (۴) نشان داده شده است.



شکل ۳: چگالی جرم ریختنی  $Al_2O_3-SiC-C$  حاوی مقادیر مختلف کربن بلک

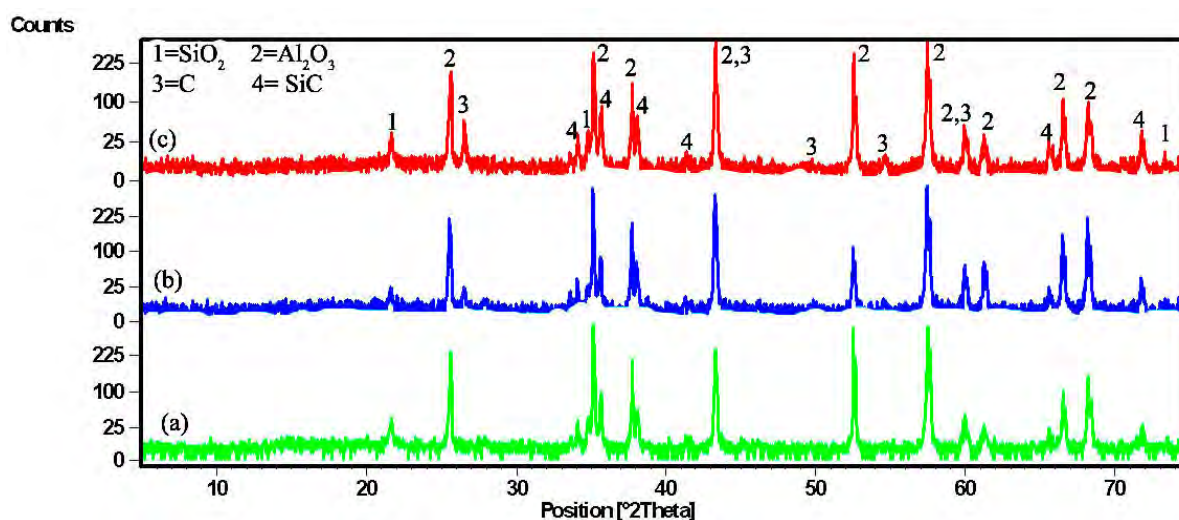


شکل ۴: تخلخل ظاهری جرم ریختنی  $Al_2O_3$ -SiC-C حاوی مقادیر مختلف کربن بلک

مشاهده می شود که افزودن کربن بلک باعث افزایش ناچیزی در تخلخل ظاهری و کاهش قابل توجه دانسیته بدنه پس از پخت می شود. اکسیداسیون کربن و خروج گاز فرار می تواند عاملی برای افزایش ناچیز درصد تخلخل ظاهری و کاهش دانسیته باشد، اما این فرایند در حضور مقادیر بالاتر کربن می تواند متوقف شود، زیرا خروج گازهای اکسید کربن باعث افزایش فشار بخار سیستم شده و مانع اکسایش بیشتر آن می شود. با توجه به کم بودن دانسیته کربن بلک در مقایسه با مواد اولیه دیگر جرم، می توان کاهش دانسیته بدنه های حاوی کربن بلک را توجیه کرد.

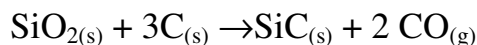
الگوی پراش اشعه X نمونه های شامل مقادیر مختلف کربن بلک پخت شده در ۱۵۰۰ درجه سانتی گراد، در شکل (۵) با یکدیگر مقایسه شده است. فاز اصلی و عمده در این الگو با کارت PDF88-821 مربوط به  $Al_2O_3$  تطبیق می کند. علاوه بر پیکهای مربوط به  $Al_2O_3$ ، پیکهای ضعیفتری نیز در این طیف مشاهده می شود که با کارت های PDF75-254، PDF76-1390 و PDF23-064 به ترتیب با الگوهای مربوط به ترکیب های SiC،  $SiO_2$  و C همخوانی خوبی دارند.





شکل ۵: الگوی پراش اشعه X نمونه های شامل مقادیر مختلف کربن بلک: (a) ۲ درصد ، (b) ۶ درصد و (c) ۱۰ درصد

به نظر می رسد که با افزایش کربن بلک به سیستم، هیچ گونه تحول فازی قابل تشخیصی مشاهده نمی شود و تنها بر شدت پیک های مربوط به فاز SiC افزوده می شود. این پدیده احتمالا به این دلیل است که بخشی از SiO<sub>2</sub> موجود با کربن واکنش کرده و بر مقدار SiC افزوده می شود. در دمای بین ۱۴۰۰ تا ۱۶۰۰ درجه سانتیگراد واکنش کربوترمال بین SiO<sub>2</sub> و کربن مطابق واکنش زیر رخ داده و تولید SiC می شود [۱۶-۱۲].



علت افزایش درصد تخلخل و کاهش چگالی این بدنه ها را در نتیجه افزودنی کربن بلک را می توان به خروج گاز مونوکسید کربن نیز نسبت داد.

#### ۴- نتیجه گیری

با توجه به بررسی های انجام گرفته در این پروژه می توان نتایج زیر را بدست آورد:

۱- حضور مقادیر کم کربن بلک باعث کاهش درصد خودجاری بودن جرم می شود به طوری که جرم در حضور ۴ درصد افزودنی کربن بلک، کمترین میزان خودجاری بودن را داراست، ولی با افزایش درصد افزودنی کربن بلک نانومتري، جریان یابی افزایش می یابد.

۲- به دلیل لغزندگی بهتر جرم ریختنی در حضور افزودنی کربن بلک، زمان کارپذیری جرم ریختنی با افزایش درصد افزودنی کربن بلک تا حدی افزایش می یابد.

۳- به علت اکسیداسیون کربن و خروج گاز فرار، افزودن کربن بلک باعث افزایش ناچیزی در تخلخل ظاهری می شود. ولی باعث کاهش قابل توجه دانسیته بدنه پس از پخت می شود زیرا علاوه بر پدیده خروج گاز، دانسیته کربن بلک در مقایسه با مواد اولیه دیگر جرم نیز کمتر می باشد. اما این فرایند در حضور مقادیر بالاتر کربن می



تواند متوقف شود، زیرا خروج گازهای اکسید کربن باعث افزایش فشار بخار سیستم شده و مانع اکسایش بیشتر آن می شود.

۴- مطالعات فازی نشان داد که با افزایش کربن بلک به سیستم، هیچ گونه تحول فازی قابل تشخیصی مشاهده نمی شود و تنها بر شدت پیک های مربوط به فاز SiC افزوده می شود.

## مراجع

- 1- S.I.Kataoka, "Refractories for steel making in Japan" Proceeding of Unified International Technical Conference on Refractories, Unitecr, (1993).
- ۲- ولفگانگ شوله "مواد دیر گداز سرامیک های" ترجمه طاهر محمودیان، نشر جانان، چاپ اول (بهار ۱۳۷۸)
- 3- C. Parr, E. Speafico, et al, "Calcium Aluminate Cement Based Castable for Demanding Applications" Proceedings of International Seminar on Monolithic Refractory Materials, Tehran, Iran, pp 141-152 (1997)
- 4- R. Krebs, "Unshaped Refractory Product" Proceedings of International Seminar on Monolithic Refractory Materials, Tehran, Iran, pp 1-43 (1997)
- 5- C. M. Jones "Composition of Monolithic Refractories for Blast Furnace Trough and Runners" Advance in Ceramics Volume 13 The American Ceramic Society (1985).
- 6- A. M. Alper, "High Temperature Oxide, Part 1", United Kingdom Editon, Academic Press, INC.(London) Ltd. 4-11(1970).
- ۷- ساسان اطرح، "بررسی اثر افزودنی ها بر جریان یابی دیرگدازهای ریختنی خودجاری در سیستم  $Al_2O_3-SiC-C$ " پایان نامه دکتری، پژوهشگاه مواد و انرژی، سال ۱۳۸۳
- 8- S. K.Choudhury, Bask Mohammed, U. Sengupta, & P. Goswami "Role of ULC Based  $Al_2O_3-SiC-C$  Castable in Improving Endless Lining Life in B.F. Runners in Indian Steel Plants" Proceeding of Unified International Technical Conference on Refractories (Unitecr 2001).
- ۹- محمد حسن امین، محمدرضا رحیمی پور و احمدرضا عباسیان، "گزارش بررسی مکانیزم خوردگی جوی های کوره بلند ذوب آهن اصفهان" به سفارش شرکت سهامی ذوب آهن اصفهان، بهار ۱۳۸۶
- 10- B. Myrhe, A. Hundred, "On the Influence of Superfine in High Alumina Castables" XXXIX'th International Colloquium Refractories, Eurogress Achen, pp. 180-182 (1996).
- ۱۱- محمد حسن امین "آشنایی با صنعت سرامیک همراه با مقدمه ای بر شیمی صنایع معدنی" از انتشارات شرکت تحقیقات صنعتی شیمی پژوهشیار چاپ اول ۱۳۸۱، صفحه ۶۷
- 12- G. C.-T. Wei, "β-SiC powders produced by carbothermic reduction of silica in a high temperature rotary furnace". *Comm. of Am. Ceram. Soc.*, C111-113(1983).
- 13- J.J. Biernacki and G.P. Wozak, Stoichiometry of the  $C+SiO_2$  reaction. *J. Am. Ceram. Soc.* **72** 1, pp. 122-129(1989).
- 14- D.H. Filsinger and D.H. Bourrie, Silica to silicon: key carbothermic reactions and kinetics. *J. Am. Ceram Soc.* **73** 6, pp. 1726-1732(1990).
- 15- R. Metselaar, J.A. Van Beek, A. Kodentsov and F. J. J. Van Loo, Carbothermal processing of silicon carbide ceramics. *Trans. Mat. Res. Soc. Jpn* **14A**, pp. 809-814(1994).
- 16- A.W. Weimer, K.J. Nilsen, G.A. Cochran and R.P. Roach, Kinetics of carbothermal reduction synthesis of beta silicon carbide. *AIChE Journal* **39** 3, pp. 493-503(1993).