

原位生成柱状莫来石和 SiC 晶须对 Al₂O₃-SiC-C 复合材料性能的影响

连建伟, 朱伯铨, 李享成, 陈平安

(武汉科技大学, 省部共建耐火材料与冶金国家重点实验室, 武汉 430081)

摘 要: 以煅烧铝矾土、棕刚玉、板状刚玉、鳞片石墨、碳化硅粉为原料, 单质 Si 粉为添加剂, 酚醛树脂为结合剂, 制备出 Al₂O₃-SiC-C 耐火材料。研究了不同热处理温度对材料显微结构及性能的影响。结果表明: 在埋碳条件下, 1 000 °C 烧后样品中有柱状莫来石物相生成; 1 400 °C 烧后柱状莫来石长径比增大, 同时还有 SiC 晶须生成。热处理温度从 1 000 °C 升高到 1 400 °C 时, 样品显气孔率和常温耐压强度变化不明显, 但常温抗折强度提高 54.73%, 达到 8.17 MPa, 载荷位移量增大近 20%。3 次热震后残余耐压强度保持率从 54.36%(200 °C 烧后)提高至 89.10%(1 400 °C 烧后)。原位生成的 SiC 晶须和发育良好的柱状莫来石, 显著提高了样品常温抗折强度、断裂韧性和抗热震性。

关键词: 铝碳化硅碳耐火材料; 柱状莫来石; 碳化硅晶须; 性能

中图分类号: TQ177 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2016)09-0000-08

网络出版时间: 网络出版地址:

In-situ Synthesis of Column-like Mullite and SiC Whiskers and its Effect on Al₂O₃-SiC-C Refractory Properties

LIAN Jianwei, ZHU Boquan, LI Xiangcheng, CHEN Pingan

(The State Key Laboratory of Refractories and Metallurgy, Wuhan University of Science and Technology, Wuhan 430081, China)

Abstract: The Al₂O₃-SiC-C refractories were prepared with calcined bauxite, brown fused alumina, tabular alumina, flake graphite and silicon carbide as raw materials, Si powder as an additive and phenolic resin as a binder. The effect of calcination temperature on the microstructural evolution and properties of refractories was investigated. The thermodynamic calculation of Al-Si-O-C systems shows that mullite and SiC phases are stable after coking at an elevated temperature. The results indicate that the column-like mullite is formed in a coke bed after fired at 1 000 °C. When the temperature is 1 400 °C, the aspect ratio of the column-like mullite increases. Also, some SiC whiskers are generated in the refractories. It is indicated that the apparent porosity and cold crushing strength both are not changed obviously when the heat treatment temperature increases from 1 000 to 1 400 °C. However, the cold modulus of rupture is increased by 54.73% (*i.e.*, 8.17 MPa) and the load displacement is improved by nearly 20%. It is also found that after three thermal shock cycles, the residual strength ratio of samples after cured at 200 °C is 54.36%, and the value increases to 89.10% after fired at 1 400 °C. The improvement in the flexural strength, fracture toughness and thermal shock resistance of the refractories could be attributed to the in situ formation of well-developed column-like mullite and SiC whiskers.

Keywords: alumina-silicon carbide-carbon refractories; column-like mullite; silicon carbide whiskers; properties

由于 Al₂O₃-SiC-C 耐火材料具有优良的抗氧化、抗侵蚀与渗透、抗冲刷及抗热震等性能, 在铁水预处理过程中得到了广泛应用^[1]。然而, 随着以脱硫、脱磷、脱硅的铁水预处理技术的发展与应用,

Al₂O₃-SiC-C 耐火材料的使用环境更加恶劣, 不仅要求耐高温熔蚀, 而且还需要耐熔渣渗透以及抵抗因熔渣与材料层反应而引起的结构性分层与剥落^[2], 这些都对材料的性能和使用寿命提出了严峻考验。

收稿日期: 2016-03-30。 修订日期: 2016-03-31。

基金项目: 国家自然科学基金(51374162 和 51174152); 湖北省自然科学基金重点项目(2014CFA091)资助。

第一作者: 连建伟(1990—), 男, 硕士研究生。

通信作者: 李享成(1978—), 男, 教授。

Received date: 2016-03-30. Revised date: 2016-03-31.

First author: LIAN Jianwei (1990—), male, Master candidate.

E-mail: 846086992@qq.com

Correspondent author: LI Xiangcheng(1978—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: lixiangcheng@wust.edu.cn

铁水预处理用 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiC-C}$ 耐火材料仍然面临着如何改善其综合高温力学性能的问题。

晶须增强是提高陶瓷材料强度和韧性的有效方法,通过引入晶须可以显著提高材料的高温力学性能和使用寿命。目前,晶须补强陶瓷材料主要有外部添加法和原位生成法。将制成的晶须由外部添加到基体材料中,虽然增韧补强效果显著,但存在晶须分散困难、分布均匀性差、难烧结以及对人体健康有害等缺点^[3];而原位生成法是在基体中配入生成晶须的原料,在高温处理过程中生长发育成晶须,以达到增韧补强的目的。

莫来石晶须具有高熔点、高弹性模量、低热膨胀系数、优良抗热震性、以及良好的抗蠕变等性能^[4-8],其广泛应用于晶须增强、高温结构材料、绝热绝缘材料、金属基、陶瓷基复合材料等领域^[9]。 SiC 晶须具有低密度、高熔点、高强度、高模量、高硬度、低热膨胀率、耐腐蚀及化学稳定性好等特性^[10-12],其在含碳耐火材料中易于原位生成,对材料的高温强度和抗熔体侵蚀等性能的改善效果明显。因此,通过原位生成的方法将上述一维材料引入到陶瓷基复合材料中,达到增强增韧的目的,已成为国内外研究者的共识。

Ji 等^[13]以煤矸石和工业氧化铝为原料,通过添加 La_2O_3 ,在 $1400\sim 1550\text{ }^\circ\text{C}$ 烧后原位形成了具有连锁结构的柱状莫来石,显著提高了材料强度。Meng 等^[14]以纯氢氧化铝、二氧化硅粉为原料,通过添加氧化钒与氟化铝细粉,在 $1350\text{ }^\circ\text{C}$ 热处理后原位生成了莫来石晶须,大幅提高了刚玉-莫来石质耐火材料的强度和断裂韧性。Monteiro 等^[15]通过热分解天然的托帕石粉末,并掺杂 5% 的稀土氧化物 La_2O_3 或 Y_2O_3 ,在 $1400\text{ }^\circ\text{C}$ 烧后原位,合成了莫来石晶须,以增强陶瓷基复合材料。Wang 等^[16]采用黑 SiC 和单质 Si 粉为原料,在 $1500\text{ }^\circ\text{C}$ 不同埋碳(焦炭、无烟煤及鳞片石墨)环境中发生炭化反应,原位生成了 SiC 晶须,大幅改善了 SiC 耐火材料强度和韧性。Karamian 等^[17]以矾土、 SiC 粉和焦炭粉为原料,通过添加 2%~6% 的硅铁合金和单质 Si 粉,经 $1400\text{ }^\circ\text{C}$ 热处理后,有纳米尺度的 SiC 晶须形成,有效提高了铝矾土-碳复合材料的体积密度、强度。

上述研究大多是通过添加稀土氧化物、氟化铝或单质 Si 粉等在材料中原位合成莫来石或 SiC 晶须,有效改善了材料使用性能,但 2 种一维材料氧化物和碳化物同时在 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiC-C}$ 耐火材料中原位生成以及其对材料性能的影响研究,国内外还少有

报道。

通过在 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiC-C}$ 耐火材料中添加单质 Si 粉,在埋碳条件下,研究了经不同高温热处理后材料中原位生成柱状莫来石和 SiC 晶须的形貌及对材料性能的影响。

1 实验

1.1 样品制备

原料为 50%(质量分数) Al_2O_3 含量不低于 86% 的煅烧铝矾土(粒度 $5\sim 3\text{ mm}$ 的为 10%, $3\sim 1\text{ mm}$ 的为 25%, $1\sim 0\text{ mm}$ 的为 15%),10% 的棕刚玉(粒度为 $3\sim 1\text{ mm}$),28% 的板状刚玉(粒度 $\leq 1\text{ mm}$ 的为 12%, $\leq 0.074\text{ mm}$ 的为 16%), Al_2O_3 的质量分数为 99.60%,4% 的鳞片石墨(粒度 $\leq 0.150\text{ mm}$),6% 的碳化硅粉(SiC 的质量分数为 97.00%),2% 的单质 Si 粉(粒度 $\leq 0.088\text{ mm}$),4% 的热固性酚醛树脂为结合剂。将原料与酚醛树脂充分混合均匀后,在 160 MPa 的压力下压制成 $25\text{ mm}\times 25\text{ mm}\times 140\text{ mm}$ 条形样品和 $\phi 36\times 36\text{ mm}$ 圆柱样品。将压制好的样品经 $200\text{ }^\circ\text{C}\times 24\text{ h}$ 固化,然后在埋炭(焦炭)条件下分别经 $1000\text{ }^\circ\text{C}\times 3\text{ h}$ 和 $1400\text{ }^\circ\text{C}\times 3\text{ h}$ 热处理。

1.2 样品表征

用 X'pert pro 型 X 射线衍射仪、Nova NanoSem 400 型扫描电子显微镜以及 INCA IE350 PentaFET X-3 型能谱仪分析烧后样品的物相组成与显微结构。

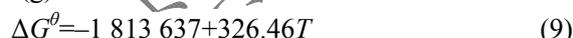
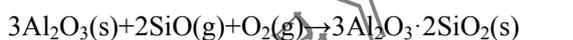
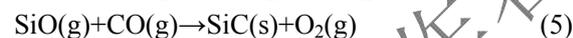
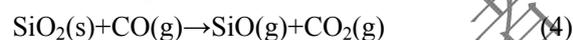
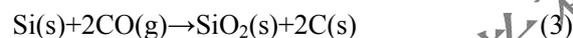
根据 GB/T2997—2000《致密定形耐火制品体积密度、显气孔率和真气孔率试验方法》,用 Archimedes 原理测定样品的显气孔率(AP)和体积密度(BD),测定介质为煤油。根据 GB/T 5072—2008《耐火材料常温耐压强度试验方法》测定样品的常温耐压强度(CCS)。根据 GB/T3001—2007《耐火材料常温抗折强度试验方法》,采用 3 点弯曲法,借助于 TIRAtest 2820 型常温抗折强度试验机测定样品的常温抗折强度(CMOR),样品跨度为 125 mm,加载速率为 0.15 MPa/s,同时记录样品的载荷-位移曲线。根据 GB/T3002—2004《耐火材料高温抗折强度试验方法》,用 GD-1 型高温抗折强度试验机测定样品的高温抗折强度(HMOR),样品跨度为 125 mm,加载速率为 0.15 MPa/s,具体是将烧后样品在埋碳条件下,加热至 $1400\text{ }^\circ\text{C}$,保温时间为 30 min。用残余耐压强度评价样品的抗热震性能,用急冷法测定残余耐压强度($\Delta T=1100\text{ }^\circ\text{C}$,水冷 3 次),具体测试方法为:将烧后样品在埋碳条件下,加热至

1 100 °C, 保温 30 min, 然后将样品快速取出放入室温水, 保持 5 min。经过 3 次水冷热震试验后, 测定样品的残余耐压强度(CCSst)。

2 结果与讨论

2.1 热力学分析

根据《实用无机热力学数据手册》^[26]和《实用热力学及其在高温陶瓷中的应用》^[27]查出各反应物的热力学数据, 按照公式 $\Delta G_r^\theta = \sum \nu_i G_i^\theta = \Delta G_0^\theta + RT \ln k_p$, 计算出在埋碳条件下 1 000 和 1 400 °C 烧后 Al-Si-O-C 体系中凝聚相的稳定区间(见图 1), 并讨论在不同 $p(\text{O}_2)$ 和 $p(\text{CO})$ 条件下, 其对体系中凝聚相的稳定关系的影响。体系中发生的化学反应见反应(1)~反应(9), 即在 1 000 和 1 400 °C 烧后, 单质 Si 粉形成亚稳态 SiO(g)气体^[16,29](反应 2~反应 4)。其中一部分 SiO(g)形成 SiC^[21,25](反应 5~反应 6), 由文献[19]可知, 形成的 SiC 可以稳定存在; 而另一部分 SiO(g)则可通过反应(8)或反应(9)形成莫来石相, 通过计算其 Gibbs 自由能函数的关系, 可知在 1 000 和 1 400 °C, 反应(8)或反应(9) Gibbs 自由能都小于零, 2 个方程都可自发进行, 莫来石相可能生成。



据文献[18-19], 在高温埋碳条件下, CO 体积分数可近似为 35%, 即 $p(\text{CO}) = 3.5 \times 10^4 \text{ Pa}$, 对应图 1 中 $\lg[p(\text{CO})/P^0] = -0.456$ (N_2 体积分数近似为 65%, 因其不参与反应故不予考虑), 则在 1 000 和 1 400 °C 下对应的 $\lg[p(\text{CO})/P^0]$ 值分别为 -22.507 和 -17.383。从图 1 可以看出, 在不同的热处理温度下, Al-Si-O-C 体系中凝聚相为 Si(s)、SiC(s)、C(s)、Al₂O₃ 及 3Al₂O₃·2SiO₂(s)。在 1 000 °C 热处理的条件下, 当 O₂ 分压大于 $5.117 \times 10^{-24} \text{ Pa}$ ($\lg[p(\text{O}_2)/P^0] > -28.291$), 体系向 3Al₂O₃·2SiO₂(s) 和 SiC(s) 共存的条件转化; 当热处理温度升高至 1 400 °C 时, 生成

3Al₂O₃·2SiO₂(s) 所需 O₂ 最低分压提高到了 $3.214 \times 10^{-15} \text{ Pa}$ ($\lg[p(\text{O}_2)/P^0] = -19.493$)。随着温度升高, 伴随着 O₂ 分压增大, 3Al₂O₃·2SiO₂(s) 相的优势区间增大。尽管埋碳条件下的气氛主要由 N₂ 和 CO 组成, 前期研究表明^[24], 这种条件下仍有 O₂ 存在, 且远大于生成 3Al₂O₃·2SiO₂(s) 相时所需最低 O₂ 分压。从热力学分析可知, 在埋碳条件下, 3Al₂O₃·2SiO₂(s) 相和 SiC(s) 相是可能共存的。

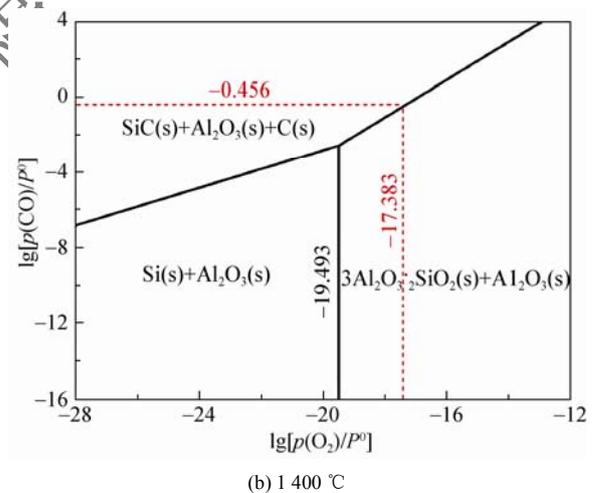
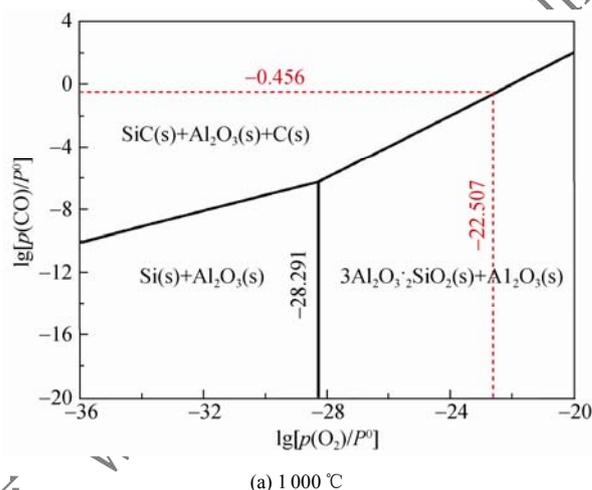


图 1 不同温度热处理下 Al-Si-O-C 体系中凝聚相的稳定区间

Fig. 1 Predominance area diagrams of system Al-Si-O-C at different temperatures

2.2 Al₂O₃-SiC-C 材料物相组成和显微结构

图 2 为样品经 1 000 和 1 400 °C 热处理后的 X 射线衍射(XRD)谱。从图 2 可以看出, 样品的主晶相均为刚玉和石墨, 来自于原料, 同时, 还有 SiC 相及衍射峰很弱的石英相, 1 400 °C 烧后, SiC 主衍射峰强度($2\theta = 35.651^\circ$), 稍强于 1 000 °C, 石英相可能是通过原料引入的。经 1 000 °C 热处理后, 仍有少量残留的 Si; 而经 1 400 °C 处理后, 单质 Si 消失,

并检测到了方石英相,可能是高温下石英相发生相变,形成方石英。在2种样品中,均有莫来石新相生成,且1400℃热处理后,莫来石衍射峰稍强于1000℃的,这与上述热力学分析结果相一致。

图3为样品经1000℃热处理后的扫描电子显微镜(SEM)照片和能谱(EDS)。图3生成了少量长径比小的短柱状和长径比较大的细长柱状莫来石,长径比分别为3~5和10~15,其成分对应图3c中的EDS谱,其中C元素来源于周围的石墨相。

从图1热力学分析中可以看出,1000℃热处理后 $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2(\text{s})$ 相和 $\text{SiC}(\text{s})$ 相可以共存,但体系中未发现有SiC晶须生成,而在XRD能谱中的SiC相则来源于原料。

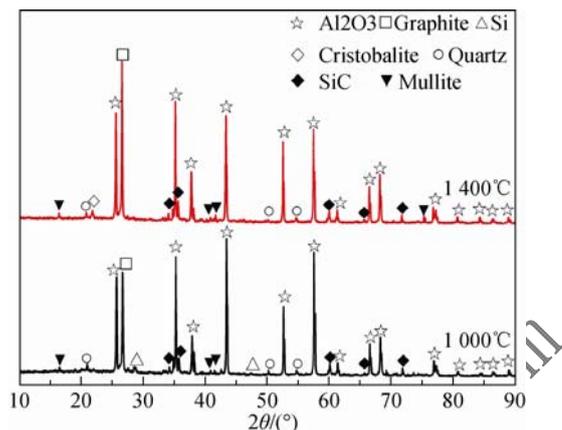
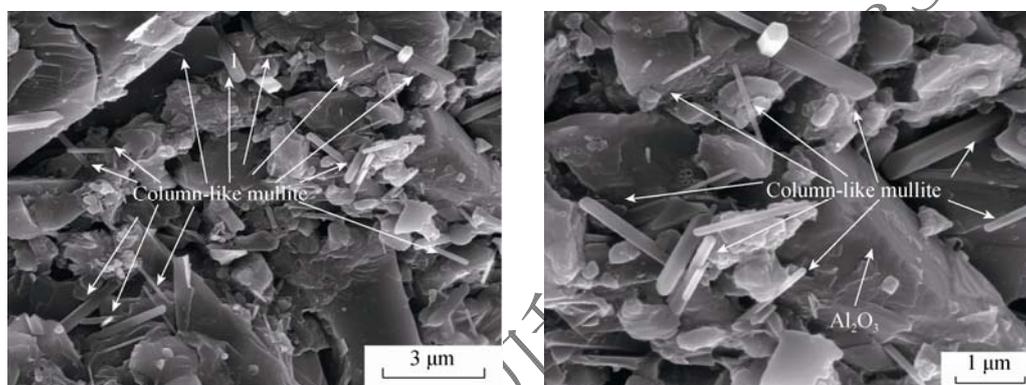
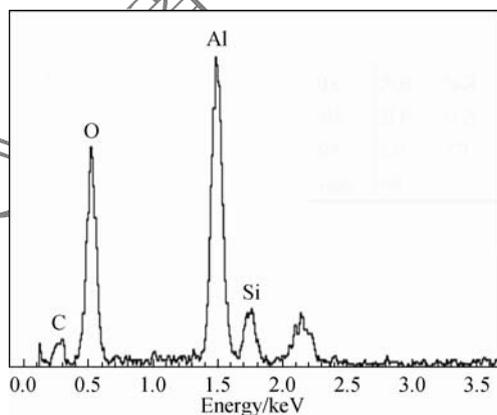


图2 不同温度热处理下样品的XRD谱
Fig. 2 XRD patterns of samples at 1000 and 1400 °C



(a) SEM photograph of mullite (b) SEM photograph of mullite

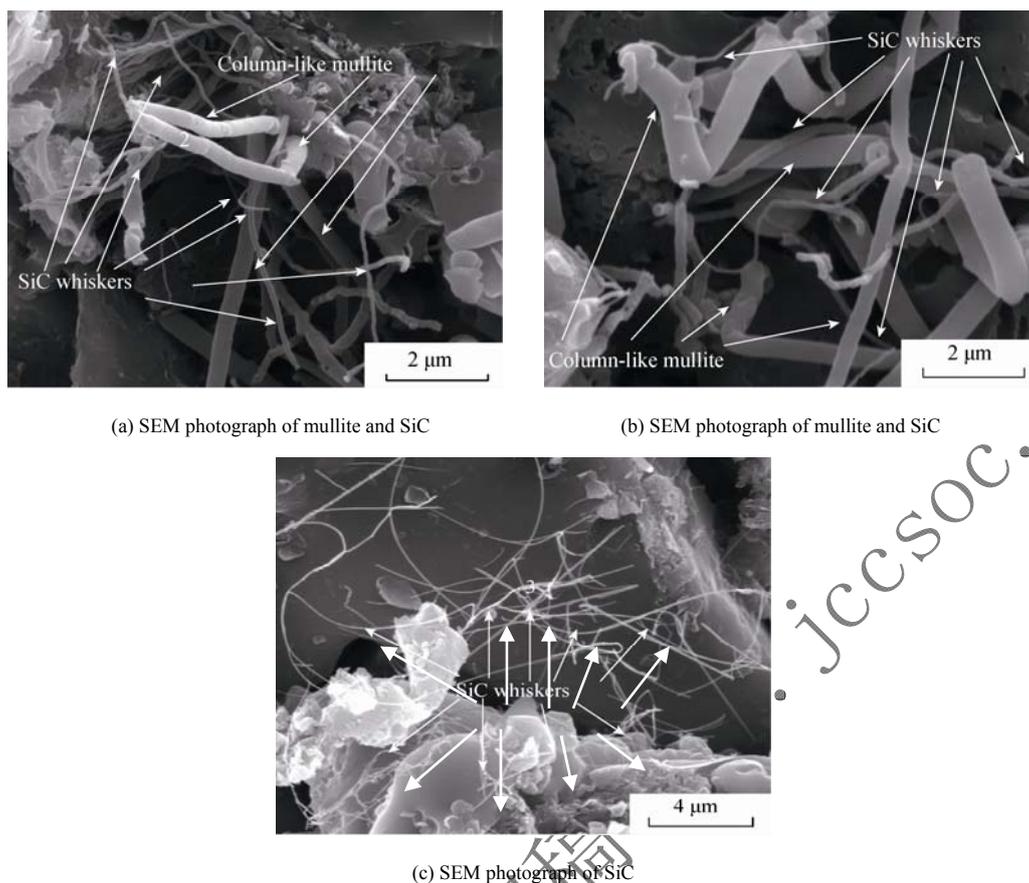


(c) EDS of mullite which is corresponding to point 1 in Fig.3(a)

图3 样品经1000℃热处理后的SEM照片和EDS谱
Fig. 3 SEM photographs and EDS spectrum of samples at 1000 °C

图4为样品经1400℃热处理后的SEM照片和EDS谱。由图4可见,图4有长径比增大的柱状莫来石相(由图2的XRD谱和图4a中点2的EDS谱,可知其为柱状莫来石),长径比为20~30。图4还发现,较多呈弯曲状具有纳米尺寸、高长径比、发育较好的SiC晶须交织在一起,长径比为40~80, SiC

晶须对应图4c中点3的EDS谱,其中,元素Al和O来源于周围的刚玉相。上述结果与图1中Al-Si-O-C相图优势区间的分析一致,即在埋炭条件下,当体系 $p(\text{O}_2)$ 和 $p(\text{CO})$ 达到平衡时,柱状莫来石和SiC晶须可以共存,SEM照片与XRD谱分析结果一致。



(a) SEM photograph of mullite and SiC

(b) SEM photograph of mullite and SiC

(c) SEM photograph of SiC

(d) EDS of mullite which is corresponding to point 2 in Fig.4(a)

(e) EDS of SiC which is corresponding to point 3 in Fig.4(c)

图 4 样品经 1400 °C 热处理后的 SEM 照片和 EDS 谱
Fig. 4 SEM photographs and EDS spectrum of samples at 1400 °C

结合体系的优势相图、物相与显微结构特征分析，1000 和 1400 °C 条件下，柱状莫来石是通过气相 SiO 与 Al₂O₃(s) 反应形成(反应 8 或反应 9)，这与文献^[20,28,30]报道一致，因而呈现一维的结构特征。而 SiC 晶须的形成机理已得到广泛研究^[21-22,25]，即体系中产生的 SiO(g) 通过与 C(s) 或 CO(g) 发生反应 [反应(5)或反应(6)]，最后形成 SiC 晶须，1000 °C 以后，并没有发现 SiC 晶须生成，这可能是由于热处理温度较低，产生的 SiO(g) 较少^[17,19]，致使体系中

只生成了柱状莫来石而没有 SiC 晶须形成。

2.3 Al₂O₃-SiC-C 材料的性能分析

图 5 为样品经不同温度热处理后的显气孔率和体积密度。由图 5 可知，样品在 200 °C 热处理后体积密度最大，这是由于样品经 200 °C 固化后，酚醛树脂在样品中形成了交联结构，使得体积密度达到最大。随着热处理温度从 1000 °C 升高到 1400 °C，样品显气孔率从 13.2% 下降到 12.3%，体积密度略有提高(从 2.91 g/m³ 提高到 2.93 g/m³)，一方面，由

于高温下发生了一定程度的烧结, 气孔率降低, 使得样品更加致密; 另一方面, 1400 °C 条件下生成了柱状莫来石和 SiC 晶须, 阻塞了气孔, 提高了材料体积密度。

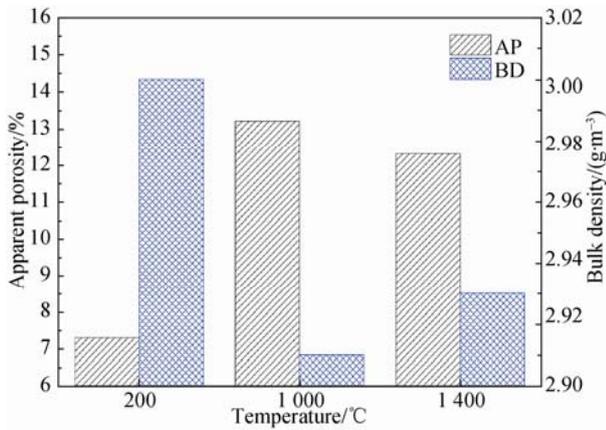


图 5 不同温度热处理下样品的显气孔率和体积密度
Fig. 5 Apparent porosity and bulk density of samples at different temperatures

图 6 为样品经不同温度热处理后的常温抗折强度和耐压强度。由图 6 可知, 经 200 °C 热处理后, 样品强度最大, 这与 200 °C 固化后酚醛树脂形成的交联结构相关。随着热处理温度从 1000 °C 升高到 1400 °C, 样品的常温抗折强度和耐压强度都有所增大, CMOR 值从 5.28 MPa 提高到 8.17 MPa, 其增幅达到 54.73%, CCS 则从 33.90 MPa 提高到 37.53 MPa, 略有提高。此结果一方面归因于高温下样品发生一定程度的烧结, 气孔率下降, 体积密度提高, 强度有所改善; 另一方面, 样品经 1400 °C 烧后, 不仅生成了发育更好的柱状莫来石相, 而且出现了 SiC 晶须, 二者提高了材料中颗粒和细粉的结合力, 有效提高了材料的强度。

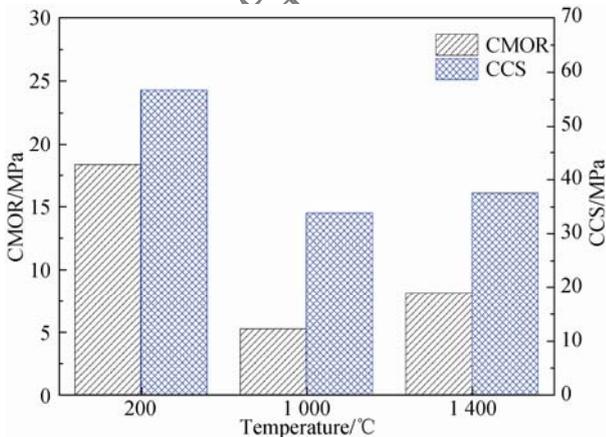


图 6 不同温度热处理下样品的常温抗折强度和耐压强度
Fig. 6 Cold modulus of rupture and cold crushing strength of samples at different temperatures

图 7 为样品经不同温度热处理后的载荷-位移曲线。由图可知, 经 200 °C 热处理后样品载荷位移量最大, 同样与固化后酚醛树脂形成的交联结构相关。随着热处理温度从 1000 °C 升高到 1400 °C, 样品载荷位移量随之增大, 其值从 0.29 mm 提高到 0.35 mm, 其增幅近 20%, 这是由于 1400 °C 烧结后, 生成了发育更好的柱状莫来石, 并且还出现了 SiC 晶须。这种原位形成的晶须在材料断裂过程中会产生桥联、拔出以及裂纹偏转效应^[12, 23], 可以有效增加材料断裂前裂纹的扩展路径和断裂功消耗, 材料断裂韧性提高。

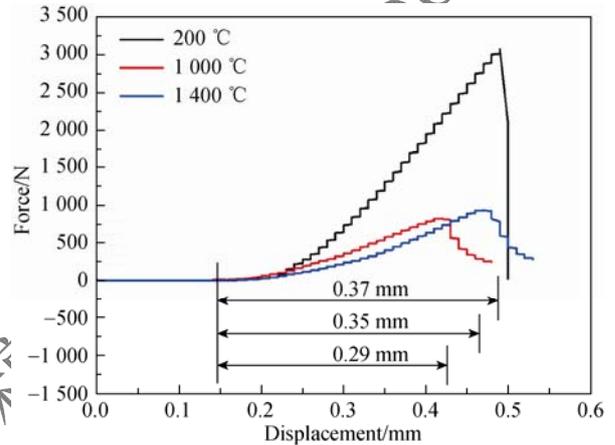


图 7 不同温度热处理下样品的载荷-位移曲线
Fig. 7 Force-displacement curves of samples at different temperatures

图 8 为样品经不同温度热处理后的高温抗折强度和 3 次水冷热震前后的耐压强度及强度保持率。由图 8a 可知, 随着热处理温度升高, 样品高温抗折强度差别不大, 在 200、1000 及 1400 °C 时分别为 4.52、3.75 及 3.87 MPa。由图 8b 可知, 随着热处理温度提高, 3 次热震前后样品的耐压强度分别为 56.70 和 30.82 MPa (200 °C 烧后)、33.90 和 28.26 MPa (1000 °C 烧后) 及 37.53 和 33.44 MPa (1400 °C 烧后), 强度保持率呈增大的趋势, 在 200、1000 及 1400 °C 时分别为 54.36%、83.36%、89.10%。这是因为高温下生成了发育更好的柱状莫来石和 SiC 晶须, 二者都具有低热膨胀率、低导热系数以及优良的化学稳定性和抗热震性能, 从而显著改善材料的热震稳定性。

3 结论

1) 在不同 $p(\text{O}_2)$ 和 $p(\text{CO})$ 条件下, 莫来石相和 SiC 相在高温下可以共同稳定存在。

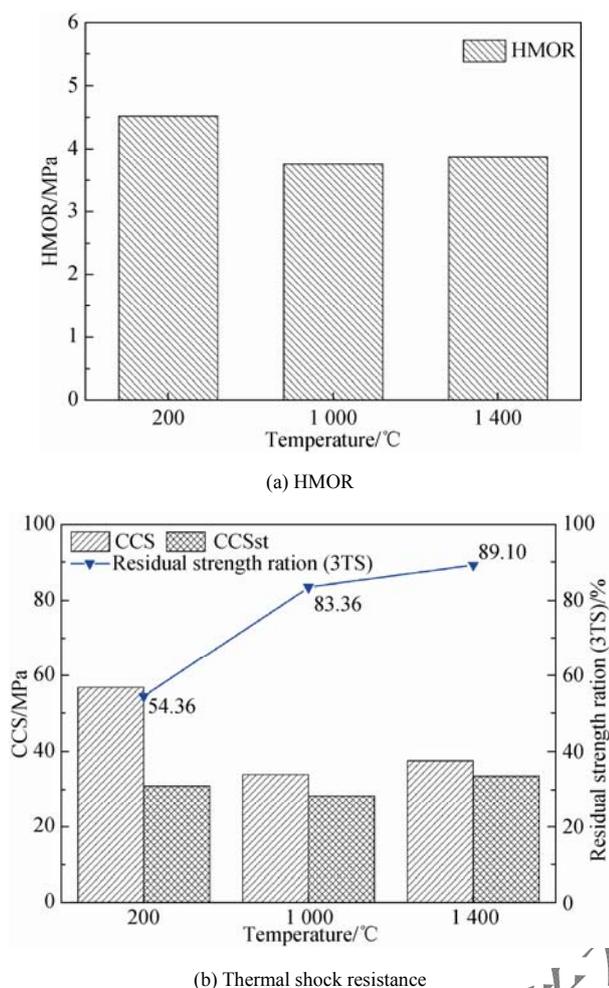


图 8 不同温度热处理下样品的高温抗折强度和抗热震性
Fig. 8 HMOR and thermal shock resistance of samples at different temperatures

2) 在埋碳条件下, 1 000 °C 烧结后, 样品中有柱状莫来石相生成, 温度升高到 1 400 °C, 柱状莫来石长径比增大, 同时还有 SiC 晶须生成。

3) 热处理温度从 1 000 °C 升高到 1 400 °C, 样品显气孔率和常温耐压强度变化不明显, 但常温抗折强度提高 54.73%, 达到 8.17 MPa, 载荷位移量增大近 20%。3 次热震后残余耐压强度保持率从 54.36%(200 °C 烧后)提高至 89.10%(1 400 °C 烧后)。原位生成的 SiC 晶须和发育良好的柱状莫来石对样品抗折强度、断裂韧性和抗热震性改善明显。

参考文献:

[1] 吴学真, 张晔, 郭立中. 铁水预处理用 Al₂O₃-SiC-C 砖的使用及其损毁机理[J]. 耐火材料, 1997, 31(2): 82-84.
WU X Z, ZHANG H, GUO L Z. Refract (in Chinese), 1997, 31(2): 82-84.

[2] 王滨, 黄锋, 杨政宏, 等. Al₂O₃-SiC-C 砖的研制及应用[J]. 耐火材料, 2013, 47(6): 451-454.
WANG B, HUANG F, YANG Z H, et al. Refract (in Chinese), 2013,

47(6): 451-454.

- [3] 张旭东, 何文, 沈建兴. 自生晶须强韧化莫来石材料的研究[J]. 中国陶瓷, 2001, 37(3): 4-6.
ZHANG X D, HE W, SHEN J X. China Ceramics (in Chinese), 2001, 37(3): 4-6.
- [4] ZHANG Y B, DING Y P, GAO J Q, et al. Mullite fibres prepared by sol-gel method using polyvinyl butyral [J]. J Eur Ceram Soc, 2009, 29(6): 1101-1107.
- [5] WANG F H, LIU Y. Mechanical and tribological properties of ceramic-matrix friction materials with steel fiber and mullite fiber[J]. Mater Des, 2014, 57: 449-455.
- [6] ZHANG H H, ZHANG Y M, WANG B, et al. Preparation and characterization of continuous alumina based fiber reinforced with orientated mullite whisker[J]. Chem Eng J, 2015, 268: 109-115.
- [7] KIM B M, CHO Y K, YOON S Y, et al. Mullite whiskers derived from kaolin[J]. Ceram Int, 2009, 35: 579-583.
- [8] 蔡舒, 孟佳宏, 杨正方, 等. 柱状自生长莫来石的制备及显微结构[J]. 硅酸盐学报, 1998, 26(2): 198-205.
CAI S, MENG J H, YANG Z F, et al. J Chin Ceram Soc, 1998, 26(2): 198-205.
- [9] FUJITA H, JEFFERSON G, MCMEEKING R M, et al. Mullite/alumina mixtures for use as porous matrices in oxide fiber composites[J]. J Am Ceram Soc, 2004, 87(2): 261-267.
- [10] LODHE M, SELVAM A, UDAYAKUMAR A, et al. Effect of polycarbosilane addition to a mixture of rice husk and coconut shell on SiC whisker growth[J]. Ceram Int, 2016, 42: 2393-2401.
- [11] MEI H, WANG H W, DING H, et al. Strength and toughness improvement in a C/SiC composite reinforced with slurry-prone SiC whiskers[J]. Ceram Int, 2014, 40: 14099-14104.
- [12] AKATSU T, NAKANISHI S, TANABE Y, et al. Toughening enhanced at elevated temperatures in an alumina/zirconia dual-phase matrix composite reinforced with silicon carbide whiskers[J]. J Eur Ceram Soc, 2013, 33: 3157-3163.
- [13] JI H P, FANG M H, HUANG Z H, et al. Effect of La₂O₃ additives on the strength and microstructure of mullite ceramics obtained from coal gangue and γ -Al₂O₃[J]. Ceram Int, 2013, 39: 6841-6846.
- [14] MENG B, PENG J H. Effects of in situ synthesized mullite whiskers on flexural strength and fracture toughness of corundum-mullite refractory materials[J]. Ceram Int, 2013, 39: 1525-1531.
- [15] MONTEIRO R R, SABIONI A C S. Preparation of mullite whiskers derived from topaz doped with rare earth oxides for applications in composite materials[J]. Ceram Int, 2016, 42: 49-55.
- [16] WANG H F, BI Y B, ZHOU N S, et al. Preparation and strength of SiC refractories with in situ β -SiC whiskers as bonding phase[J]. Ceram Int, 2016, 42: 727-733.
- [17] KARAMIAN E, MONSHI A, BATAILLE A. Formation of nano SiC whiskers in bauxite-carbon composite materials and their consequences on strength and density[J]. J Eur Ceram Soc, 2011, 31: 2677-2685.
- [18] ZHANG S, MARRIOTT N J, LEE W E. Thermochemistry and microstructures of MgO-C refractories containing various antioxidants[J]. J Eur Ceram Soc, 2001, 21: 1037-1047.
- [19] DENG X, LI X C, ZHU B Q, et al. In-situ synthesis mechanism of plate-shaped β -Sialon and its effect on Al₂O₃-C refractory properties[J]. Ceram Int, 2015, 41: 14376-14382.
- [20] WEI J C, TU J B, CAO J. Effect of silicon on molten iron corrosion resistance of corundum-silicon nitride composites[J]. Adv Mater Res, 2011, 284-286: 210-213.

-
- [21] FAN H B, Li Y W, SANG S B. Microstructures and mechanical properties of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-C}$ refractories with silicon additive using different carbon sources[J]. *Mater Sci Eng A*, 2011, 528: 3177–3185.
- [22] ZHU B Q, ZHU Y N, LI X C, et al. Effect of ceramic bonding phases on the thermo-mechanical properties of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-C}$ refractories[J]. *Ceram Int*, 2013, 39: 6069–6076.
- [23] SCITI D, PIENTI L, FABBRICHE D D, et al. Combined effect of SiC chopped fibers and SiC whiskers on the toughening of ZrB_2 [J]. *Ceram Int*, 2014, 40: 4819–4826.
- [24] 张品为, 李亨成, 朱伯铨. 炭源对碳辅助法合成 Al_2O_3 晶须形貌的影响[J]. *稀有金属材料与工程*, 2013, 42: 501–504.
Zhang P W, Li X C, Zhu B Q. *J Rare Met Mater Eng (in Chinese)*, 2013, 42: 501–504.
- [25] BEHERA S K, MISHRA B. Strengthening of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-C}$ slide gate plate refractories with expanded graphite[J]. *Ceram Int*, 2015, 41: 4254–4259.
- [26] 叶大伦, 胡建华. 实用无机物热力学数据手册[M]. 北京: 冶金工业出版社, 2002: 28–42.
- [27] 山口明良. 实用热力学及其在高温陶瓷中的应用[M]. 武汉: 武汉工业大学出版社, 1993: 22–46.
- [28] KIM H, MOORHEAD A J. Oxidation behaviour and effects of oxidation on the strength of SiC-whisker reinforced alumina[J]. *J Mater Sci*, 1994, 29: 1656–1661.
- [29] LIANG F, LI N, LIU B K, et al. Effect of carbon source on crystal morphology of SiC *in-situ* formed in $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Si-C}$ matrix[J]. *China Refract*, 2015, 24(2): 11–15.
- [30] WEI X H, WANG Y J, LI H X, et al. Effect of silicon addition on the properties and microstructure of corundum-mullite refractory[J]. *Adv Mater Res*, 2010, 105–106: 63–66.

《硅酸盐学报》作者初稿

WWW.JCCSOC.COM