

树脂基多孔碳孔结构对 C_f/SiC 复合材料连接性能的影响

吴西士^{1,2}, 朱云洲², 黄庆¹, 黄政仁^{1,2}

(1. 中国科学院 宁波材料技术与工程研究所, 宁波 315201; 2. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 上海 201899)

摘要: 连接技术是实现大尺寸以及复杂构型 C_f/SiC 复合材料制备及工程化应用的关键技术。本工作使用酚醛树脂作为碳源, 通过反应连接法实现了 C_f/SiC 复合材料的稳定连接, 研究了多孔碳坯的体积密度和孔径对接头连接性能和微观结构的影响, 讨论了惰性填料含量对接头连接性能和显微组织的影响。研究表明: 树脂基多孔碳素坯的体积密度和孔径分别选定在 0.71~0.90 g·cm⁻³ 和 200~600 nm 比较合适, 随着多孔碳素坯孔径增加, 游离硅尺寸逐渐增大; 当孔径为 190 nm 时, 连接件强度最大为(125±12) MPa。添加 SiC 惰性填料可以明显减小多孔碳素坯的体积收缩, 当 SiC 惰性填料质量分数为 50% 时, 连接件强度最高达到(216±44) MPa, 基本与基体材料强度相当。总体而言, 本研究为实现 C_f/SiC 复合材料稳定连接提供了理论指导, 对实现复杂形状或大型 C_f/SiC 复合材料的制备和工程应用具有重要意义。

关键词: 多孔碳; 反应连接; C_f/SiC 复合材料; 力学性能; 微观结构

中图分类号: TQ174/TB332 文献标志码: A

Effect of Pore Structure of Organic Resin-based Porous Carbon on Joining Properties of C_f/SiC Composites

WU Xishi^{1,2}, ZHU Yunzhou², HUANG Qing¹, HUANG Zhengren^{1,2}

(1. Ningbo Institute of Materials Technology & Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China;
2. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201899, China)

Abstract: Joining technology has become an important part of the preparation and engineering application of large or complex-shaped C_f/SiC composites. In this study, the stable joining of C_f/SiC composites was achieved *via* the Si-C reaction joining method by using the phenolic resin as the carbon precursor. Effects of the bulk density and pore size of porous carbon blanks on the joining properties and microstructure of the joints were investigated. Effect of the content of inert fillers on the joining properties and microstructure of joint were discussed. Bulk density and pore size of the resin-based porous carbon blank are suitable to be set in the range of 0.71–0.90 g·cm⁻³ and 200–600 nm, respectively. The size of free silicon increases gradually with the increase of the pore size. The flexural strength of the joined specimens can reach (125±12) MPa at pore size of 190 nm. Addition of SiC inert filler is obviously beneficial to reduce the volume shrinkage of the porous carbon blank. Flexural strength of the joined specimens reached the highest value, *i.e.*, (216±44) MPa at the inert filler content of 50%. Overall, this study provides

收稿日期: 2022-05-25; 收到修改稿日期: 2022-06-30; 网络出版日期: 2022-08-04

基金项目: 国家重点研发计划(2021YFB3701500); 国家自然科学基金青年项目(52002379); 浙江省博士后科研项目择优资助 National Key R&D Program of China (2021YFB3701500); National Natural Science Foundation of China (52002379); Postdoctoral Science Preferential Funding of Zhejiang Province, China

作者简介: 吴西士(1991–), 男, 博士. E-mail: wuxishi@nimte.ac.cn
WU Xishi (1991–), male, PhD. E-mail: wuxishi@nimte.ac.cn

通信作者: 朱云洲, 副研究员. E-mail: yunzhouzhu@mail.sic.ac.cn; 黄政仁, 研究员. E-mail: zhrhuang@nimte.ac.cn
ZHU Yunzhou, associate professor. E-mail: yunzhouzhu@mail.sic.ac.cn; HUANG Zhengren, professor. E-mail: zhrhuang@nimte.ac.cn

theoretical guidance for the stable joining of C_f/SiC composites, which has significance for realizing the preparation and engineering application of complex-shaped or large C_f/SiC composites.

Key words: porous carbon; reaction bonded joining; C_f/SiC composites; mechanical property; microstructure

碳纤维增强碳化硅陶瓷基(C_f/SiC)复合材料具有耐高温、密度低和比刚度高等优点,在航空航天、国防、核能和能源等领域有广泛的应用^[1-4]。各领域迫切需要制备复杂构型和大尺寸 C_f/SiC 复合材料,但一次成型非常困难,将简单构件连接起来制备复杂形状或大尺寸复合材料是一种行之有效的方法。目前, C_f/SiC 复合材料连接方法主要有活性金属钎焊连接^[5]、玻璃焊料连接^[6]、MAX 相连接^[7]、聚合物陶瓷前驱体连接^[8]以及反应连接^[9-12]。

反应连接法是将熔融硅渗入含有 SiC 和碳粉的多孔碳素坯中,在 1450~1700 °C 发生 Si-C 反应形成新的 SiC。与其他方法相比,反应连接法可以设计中间层以匹配连接材料的热机械性能。Singh 等^[9-10]系统探讨了材料成分和工艺过程对反应连接法得到的接头的连接性能的影响机理。Luo 等^[12]使用 SiC/C 流延膜通过 Si-C 反应连接法连接 SiC 陶瓷,实现了连接层厚度的精准调控。但目前反应连接法使用的多孔碳素坯碳源多为固体粉末,如碳粉、石墨和焦油^[10],固体碳源会让反应连接过程变得复杂和难以控制,主要体现在两个方面:(1)难以获得均匀分布的多孔碳生坯;(2)难以获得低黏度的高固含量浆料。高温下熔融硅的充分渗透与孔结构关系密切,是获得稳定连接的重要因素。研究表明,可以用有机树脂代替石墨粉作为碳源,通过聚合诱导相分离方法获得均匀的多孔碳^[13]。酚醛树脂具有碳收率高、附着力好等优点,具有作为碳源的潜力。

我们前期研究实现了酚醛树脂孔结构的调控^[14-16],为本研究提供了有力支撑。本研究将重点研究多孔碳素坯体积密度、孔径及惰性填料对连接样品接头力学性能和微观结构的影响,为实现 C_f/SiC 复合材料稳定连接提供理论指导,这对于实现复杂形状或大型 C_f/SiC 复合材料制备具有重要意义。

1 实验方法

1.1 实验原料

研究所用的基体材料为 C_f/SiC 复合材料,由实验室自制,密度为 (2.77 ± 0.03) g/cm³,常温弯曲强度为 129~241 MPa。使用热固性酚醛树脂(PF,工业级)作为碳源,乙二醇(EG,AR)作为有机溶剂,氯化亚铁($FeCl_2$, AR>98.0%)和硼酸(H_3BO_3 , GR>99.8%)作

为成孔剂, α -SiC 粉末(SIKA, 0.5 μ m)作为惰性填料,聚乙烯吡咯烷酮(K-30,AR)作为分散剂。

1.2 制备及连接过程

配制连接层所用树脂基浆料: (a)将有机溶剂、酚醛树脂、成孔剂混合,搅拌使之充分溶解,得到树脂基溶液;(b)将碳化硅微粉、分散剂与树脂基溶液混合,使用聚氨酯球磨罐和 SiC 陶瓷球对浆料球磨 6 h 后,取出浆料静置并抽真空除去气泡,得到连接用树脂基浆料。

基体材料的处理: 放置于酒精中超声清洗 20 min,干燥后待用。在基体材料之间涂覆树脂基浆料,使用石墨模具夹紧并在 80~120 °C 保温 8 h,升温至 200 °C 再保温 6 h。之后放置于 900 °C 真空炉中碳化,使连接层中的树脂基溶液或浆料裂解为多孔碳素坯。冷却后取出,将样品埋入硅粉,真空条件下在 1600 °C 反应 30 min。

1.3 材料表征

采用 X 射线衍射仪(XRD, D/Max-2250V)分析物相组成。使用场发射扫描电子显微镜(SEM, SU-8220, Hitachi, 日本)分析样品微观结构。采用 Instron5566 系统测试连接样品的抗弯强度。强度保留率为连接件抗弯强度与同批次基体材料抗弯强度的比值。通过 HF-HNO₃(1:1 配比)混合酸中蚀刻 16 h 的质量损失计算得到游离硅含量。

2 结果与讨论

2.1 多孔碳素坯密度对连接样品微观结构与性能的影响

实现碳与熔融硅完全反应生成碳化硅且无游离硅残留的多孔碳素坯理论密度为 0.963 g·cm⁻³^[17]。但硅碳反应过程中新生成的碳化硅将堵塞渗 Si 通道,无法保证在理论密度下实现碳与液相 Si 完全反应。因此,需要控制多孔碳素坯的密度低于理论密度。本研究探讨了不同密度(0.31、0.51、0.70 和 0.90 g·cm⁻³)的多孔碳素坯对连接性能的影响规律。

不同密度的多孔碳素坯连接试样微观结构如图 1(a-c)所示,灰色区域为 SiC,黑色相为碳纤维,白色区域为游离硅相,连接层厚度范围大约为 10~20 μ m,连接层中未发现残留碳,说明多孔碳素坯中的碳全

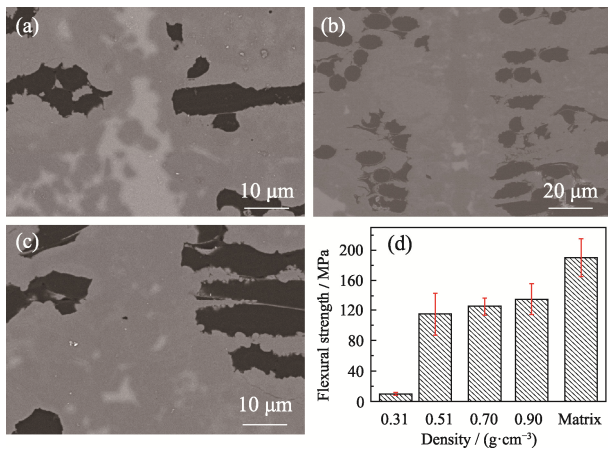


图 1 不同体积密度碳素坯((a)0.51, (b)0.70, (c)0.90)接头微观结构, (d)连接样品力学性能

Fig. 1 Microstructures of joints with different volumn densities (a) 0.51, (b) 0.90) and (d) flexural strengths of the joined specimens

部与熔融硅反应生成碳化硅。随着多孔碳素坯密度增加, 硅连接层中白色区域逐渐减少, 说明游离硅含量明显下降。如图 1(d)所示, 连接后样品的抗弯强度随着多孔碳素坯密度的增加而增大。多孔碳密度较低孔隙率势必更高, 这使得反应完成后生成的

SiC 无法有效填充孔隙, 熔融硅填充这些孔隙后留下大块游离硅, 这是其力学性能较差的原因; 增加碳素坯密度, 降低孔隙率, 可明显降低游离硅含量, 提高连接性能。所测复合材料连接件均在接头处断裂。因此, 多孔碳素坯的密度在 0.71~0.90 g·cm⁻³ 范围较为合适。

2.2 多孔碳素坯孔径对连接接头微观结构与性能的影响

熔融硅浸渗多孔碳素坯依赖于多孔结构的毛细管力, 在相同的浸渗时间内, 孔径越小, 毛细管力驱动作用越强, 使得液相硅在多孔素坯中的渗透速率也将越大^[18]; 孔道半径越大, 熔融硅渗透理论深度越大^[19-20]。因此, 如何有效平衡这两方面的因素至关重要。本研究在满足多孔碳素坯密度基本相同的情况下, 研究不同孔径(190、642、1226、1552、2363 nm)的多孔碳素坯对连接头性能的影响。树脂溶液组成及热解后多孔碳素坯的性能参数列于表 1 中, 树脂溶液热解后残留碳质量分数在 23%~27%。

为了研究不同孔径多孔碳素坯熔融渗过程, 先利用多孔碳素坯在高温下融渗液相硅制备反应烧结 SiC 样品。图 2(a~e)所示为五种孔径的多孔碳素坯

表 1 树脂溶液组成及裂解后多孔碳素坯性能参数

Table 1 Composition of resin solution and properties of porous carbons after pyrolysis

Sample	PF/%	EG/%	Pore former*	Residual carbon**/%	Average pore size/nm	Bulk density/(g·cm ⁻³)
1	50	50	FeCl ₂ (1%)	23±1.1	190±15	0.73±0.01
2	50	50	H ₃ BO ₃ (1.5%)	24.3±0.9	642±15	0.74±0.01
3	50	50	FeCl ₂ (1%) + H ₃ BO ₃ (1.5%)	24.1±1.7	1226±48	0.74±0.03
4	50	50	H ₃ BO ₃ (2.5%)	25.8±2.1	1552±38	0.79±0.03
5	50	50	H ₃ BO ₃ (3.5%)	26.7±1.5	2363±54	0.79±0.03

* represents the additional content of the total weight of EG and PF (in mass)

** represents the residual carbon content of the resin solution (in mass)

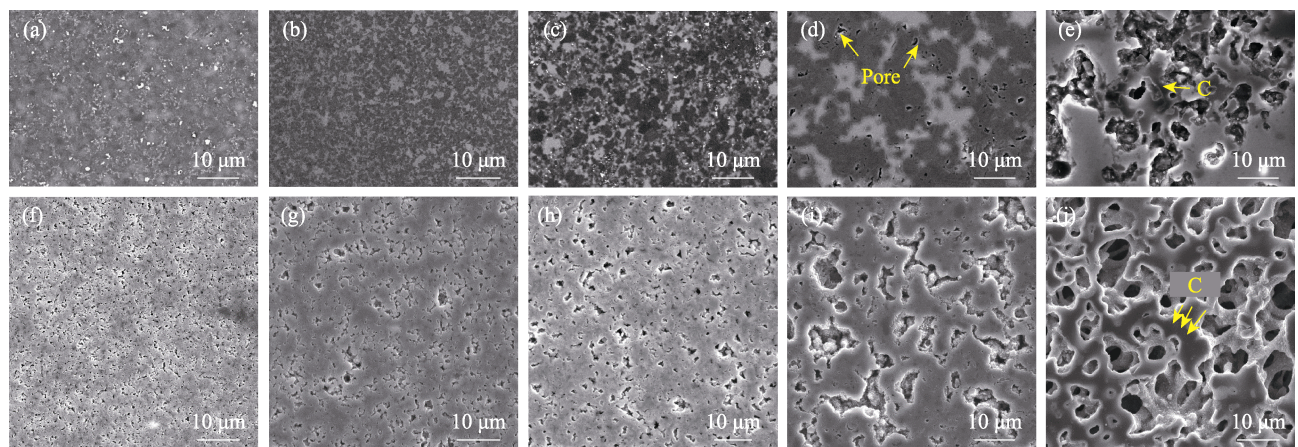


图 2 HF-HNO₃ 腐蚀前后不同孔径碳素坯制备反应烧结碳化硅陶瓷表面微观形貌

Fig. 2 Morphologies of the polished surfaces before and after HF-HNO₃ corrosion of RBSC fabricated from preforms with different pore sizes (a, f) 190 nm; (b, g) 642 nm; (c, h) 1226 nm; (d, i) 1552 nm; (e, j) 2363 nm

所制备的反应烧结碳化硅样品的表面微观形貌, 其中白色区域为 Si 相, 灰色区域为 SiC, 黑色区域为 C。当孔径较小时(图 2(a~c)), 样品基本致密, 没有气孔和残留碳等, 熔融 Si 与 C 完全反应。当孔径增大至 1552 nm 时, 样品中出现气孔且分布在碳化硅相中, 这是由于熔融硅渗入后与碳反应生成 SiC 堵塞了渗透通道, 液相硅无法填充孔隙。随着孔径继续增大到 2363 nm, 样品出现大量孔洞和未反应的残留碳, 说明液相 Si 未能完全与 C 浸渍, 主要原因是孔径增大, 减小了毛细管力, 降低了渗透速率, 从而在熔融硅还未完全浸渍多孔碳素坯时, 新生成的碳化硅堵塞了熔融硅的渗透通道。样品表面通过 HF-HNO₃ 混合酸进行游离硅腐蚀, 游离硅去除后在样品表面留下了孔洞(图 2(f~j))所示, 可以通过孔洞大小来表征样品中游离硅尺寸。很明显, 随着多孔碳素坯孔径增大, 游离硅尺寸逐渐增大。

图 3 所示为不同孔径多孔碳素坯在 1600 °C 渗硅后烧结体的 XRD 图谱, 当孔径小于 2363 nm 时, 样品主要由 Si 和 β -SiC 相组成, 随孔径增大, 硅峰相对强度变化不大。当孔径在 2363 nm 时, 出现石墨特征峰, 说明存在碳残留。熔融硅与碳反应是放热过程, 局部温度可达到 2000 °C 以上, 导致残留碳石墨化。不同孔径多孔碳素坯制备的反应烧结碳化硅的性能参数如表 2 所示, 从表中可以看出, 游离硅含量变化不大, 意味着游离硅含量与孔径大小无关。样品弯曲强度在孔径为 190 nm 时达到最大, 即(296±28) MPa。弯曲强度随多孔碳素坯孔径的增加而减小, 原因在于游离硅尺寸越小, 力学性能越优异^[21]。当孔径较大时(2363 nm), 由于存在残留碳

和大量孔洞, 弯曲强度大幅度下降。

不同孔径的多孔碳素坯作为连接材料所得的连接试样表面经 HF-HNO₃ 腐蚀后的微观结构如图 4 所示。连接层中碳化硅相表现为灰色, 碳纤维表现为黑色, 其中孔洞主要为游离硅被 HF-HNO₃ 腐蚀所致。孔径为 14 nm 时, 熔融硅更易发生堵塞, 在连

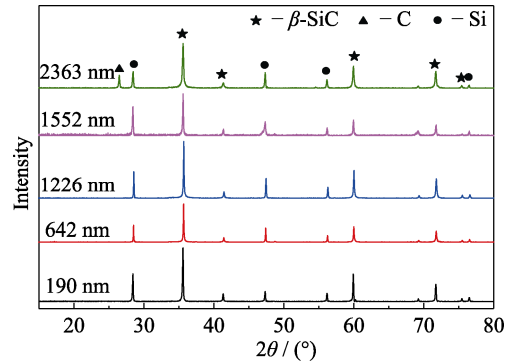


图 3 不同孔径多孔碳素坯反应烧结样品的 XRD 图谱
Fig. 3 XRD patterns of the RBSC fabricated from preforms with different pore sizes

表 2 不同孔径的多孔碳素坯反应烧结样品性能
Table 2 Properties of the RBSC fabricated from preforms with different pore sizes

Pore size/nm	Open porosity/%	Density/(g·cm ⁻³)	Flexural strength/MPa	Residual Si/(%, in volume)
190	0.97	2.93	296±28	16
642	1.26	2.91	268±46	14
1226	1.87	2.88	248±22	16
1552	3.51	2.81	238±44	12
2363	18.76	2.10	115±32	13

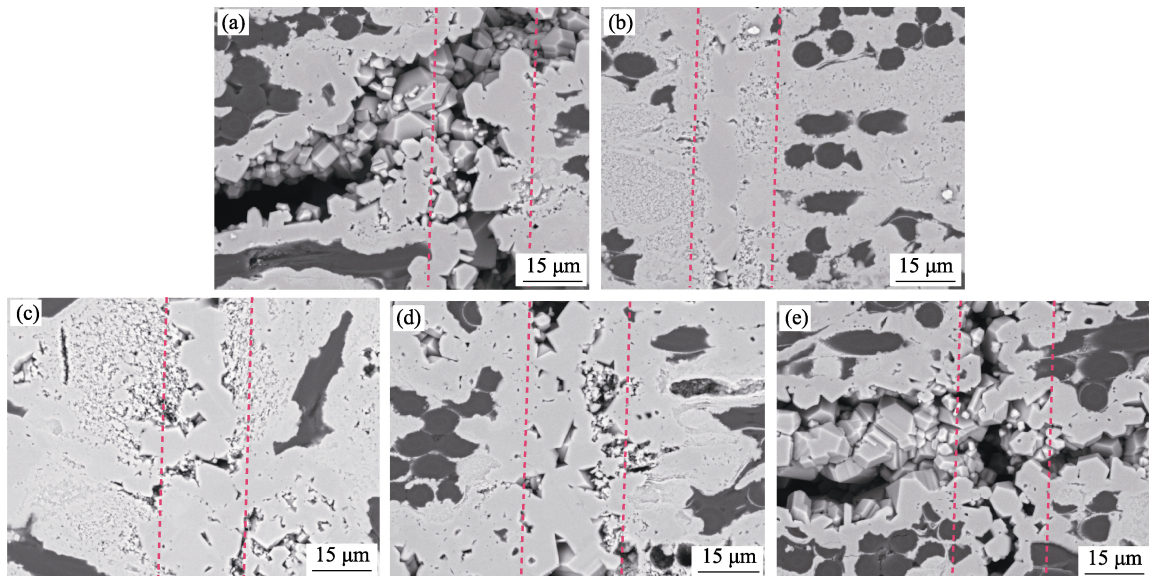


图 4 HF-HNO₃ 腐蚀后不同孔径多孔碳素坯连接样品表面形貌

Fig. 4 Surface microstructures after HF-HNO₃ corrosion of joining samples with different pore sizes
(a) 14 nm; (b) 190 nm; (c) 316 nm; (d) 642 nm; (e) 1226 nm

接层核心区域留下更多孔洞(图 4(a))。连接层中新生成的 SiC 颗粒随着孔径增大而增大, 腐蚀后留下的孔洞也显示出游离硅尺寸随孔径的增大而增大。当孔径增大至 1226 nm 时, 连接层中心区域留下的孔洞较大(图 4(e)), 说明反应后生成游离硅尺寸过大, 这将极大地影响连接性能。表 3 给出了不同孔径多孔碳素坯连接件接头的弯曲强度, 样品弯曲强度在孔径为 190 nm 时达到最大, 即(125±12) MPa, 所测复合材料连接件均在接头处断裂。孔径过小和过大都会降低连接性能。

2.3 惰性填料对接头微观结构和力学性能的影响

酚醛树脂裂解时体积收缩较大, 产生缺陷风险增大, 添加惰性填料有助于降低体积收缩。添加不同含量 SiC 惰性填料的连接用树脂基浆料组成如表 4 所示。图 5(a)为惰性填料作用示意图, 图 5(b)为树脂基浆料裂解后多孔碳素坯的体积收缩率和孔隙率, 可以看出, 收缩率随惰性填料含量增加逐渐下降。相比未添加惰性填料(43%), 惰性填料含量为 50%

表 3 不同孔径连接样品力学性能

Table 3 Properties of joining samples with different pore sizes

Pore size/nm	Flexural strength/MPa	Strength retention/%
14	90±28	61
190	125±12	85
316	77±10	52
642	107±15	73
1226	65±22	44

表 4 树脂基浆料组成

Table 4 Composition of resin-based slurry

Sample	PF/%	EG/%	Dispersant*/ %	Pore former** (FeCl ₂)/%	α-SiC powder/%
1	40	40	4	1	20
2	35	35	4	1	30
3	30	30	4	1	40
4	25	25	4	1	50
5	22.5	22.5	4	1	55

* represents the additional content of the total weight of EG, PF and α-SiC powder (in mass)

**represents the additional content of the total weight of EG and PF (in mass)

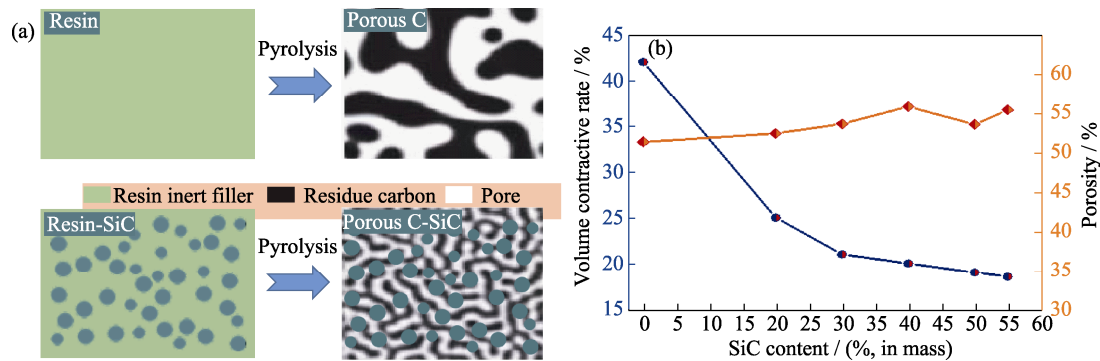


图 5 (a)惰性填料添加后作用示意图和(b)多孔碳素坯的体积收缩和孔隙率变化曲线

Fig. 5 (a) Schematic of the action of inert filler and (b) volume shrinkage and porosity change curves of porous carbon blanks

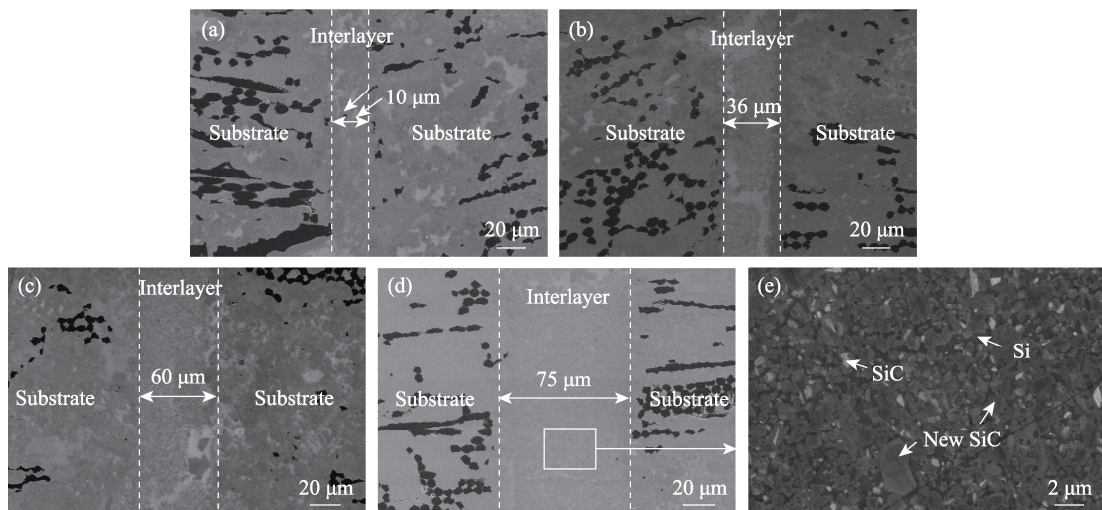


图 6 不同含量((a) 30%; (b) 40%; (c) 50%; (d) 55%, 质量分数)惰性填料连接件表面微观结构及(e)图(d)的局部放大图
Fig. 6 Microstructures of the joint with different contents of inert filler ((a) 30%; (b) 40%; (c) 50%; (d) 55%, in mass) and (e) partial enlargement of (d)

时体积收缩已下降至 18.5%。

连接样品微观形貌如图 6 所示,从图中可以看出,连接层内部区域没有观察到未反应的碳,说明多孔碳素坯中的碳全部与熔融硅反应生成碳化硅。同时,连接层致密无气孔,游离硅完全填充了孔隙。随着惰性填料含量增加,连接层厚度逐渐增加,主要由树脂基浆料黏度的增加和裂解时体积收缩减小导致。图 6(e)为图 6(d)连接层局部放大图,其中白色相为添加的 SiC 颗粒,浅灰色相为新生成的 SiC,深灰色区域为游离硅。可以看出惰性 SiC 颗粒均匀分布在连接层中,新生成的 SiC 稳定附着在惰性 SiC 颗粒表面。

图 7 显示,随着 SiC 含量增大, C_f/SiC 复合材料连接件弯曲强度随之增加。当 SiC 质量分数为 50% 时,连接件力学性能最优,弯曲强度达到(216±44) MPa,连接件均在基体处断裂,主要归因于加入惰性填料对降低多孔碳素坯裂解后体积收缩具有较好的效果,很大程度上减少了裂纹等缺陷出现的风险。但当 SiC 含量增大至 55% 时,连接层厚度增加将增大缺陷产生的风险^[12],使得连接性能略有下降。

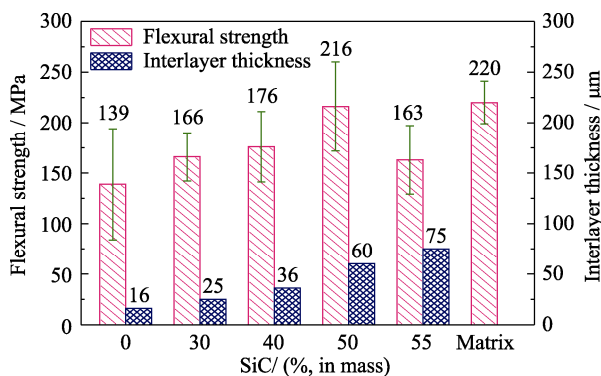


图 7 不同含量惰性填料连接件的力学性能

Fig. 7 Flexural strength of the joined samples with different contents of inert filler

3 结论

使用酚醛树脂作为碳源实现了 C_f/SiC 复合材料的稳定连接,并研究了多孔碳素坯体积密度、孔径以及惰性填料含量对接头连接性能和微观结构的影响。主要结论如下:

1) 多孔碳素坯的体积密度范围在 0.71~0.90 g·cm⁻³ 比较适宜。连接层中游离 Si 含量随多孔碳素坯体积密度的增加逐渐下降,性能更优。

2) 多孔碳素坯的孔径范围在 200~600 nm 比较适宜,随着孔径增大,游离硅尺寸逐渐增大。平均孔径在 190 nm 时,连接件的弯曲强度最大达(125±12) MPa。

3) SiC 惰性填料有利于减小多孔碳素坯的体积

收缩,当 SiC 质量分数为 50% 时,连接件弯曲强度达到(216±44) MPa,基本与基体材料强度相当。

参考文献:

- [1] CHENG T B, WANG X R, ZHANG R B, *et al.* Tensile properties of two-dimensional carbon fiber reinforced silicon carbide composites at temperatures up to 2300 °C. *Journal of the European Ceramic Society*, 2020, **40**(3): 630–635.
- [2] CHEN S, CHEN P, DUAN J, *et al.* Thermal cycling behavior of bi-layer Yb₂Si₂O₇/SiC EBC coated C_f/SiC composites in burner rig tests. *Advanced Composites and Hybrid Materials*, 2022, **5**: 2184–2192.
- [3] BERBON M Z, DIETRICH D R, MARSHALL D B, *et al.* Transverse thermal conductivity of thin C/SiC composites fabricated by slurry infiltration and pyrolysis. *Journal of the American Ceramic Society*, 2001, **84**(10): 2229–2234.
- [4] CAO X Y, YIN X W, FAN X M, *et al.* High temperature flexural properties of SiBC modified C/SiC composites. *Ceramics International*, 2014, **40**(4): 6185–6190.
- [5] LIU Y, ZHU Y Z, YANG Y, *et al.* Microstructure of reaction layer and its effect on the joining strength of SiC/SiC joints brazed using Ag-Cu-In-Ti alloy. *Journal of Advanced Ceramics*, 2014, **3**(1): 71–75.
- [6] SAIED M A, LLOYD I K, HALLER W K, *et al.* Joining dental ceramic layers with glass. *Dental Materials*, 2011, **27**(10): 1011–1016.
- [7] YANG H, ZHOU X B, SHI W, *et al.* Thickness-dependent phase evolution and bonding strength of SiC ceramics joints with active Ti interlayer. *Journal of the European Ceramic Society*, 2017, **37**(4): 1233–1241.
- [8] JEONG D H, SEPTIADI A, FITRIANI P, *et al.* Joining of SiC_f/SiC using polycarbosilane and polysilazane preceramic mixtures. *Ceramics International*, 2018, **44**(9): 10443–10450.
- [9] SINGH M, LARA-CURZIO E. Design, fabrication, and testing of ceramic joints for high temperature SiC/SiC composites. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power-Transactions of the ASME*, 2001, **123**(2): 288–292.
- [10] SINGH M. Microstructure and mechanical properties of reaction-formed joints in reaction-bonded silicon carbide ceramics. *Journal of Materials Science*, 1998, **33**(24): 5781–5787.
- [11] LI S B, MA M L, GAO J Q, *et al.* Reaction forming of joints in silicon carbide ceramic materials. *Materials Science and Engineering A-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 2008, **483–484**: 747–750.
- [12] LUO Z H, JIANG D L, ZHANG J X, *et al.* Development of SiC-SiC joint by reaction bonding method using SiC/C tapes as the interlayer. *Journal of the European Ceramic Society*, 2012, **32**(14): 3819–3824.
- [13] ZHANG Y M, YUAN Z Y, ZHOU Y F. Gelcasting of silicon carbide ceramics using phenolic resin and furfuryl alcohol as the gel former. *Ceramics International*, 2014, **40**(23): 7873–7878.
- [14] WU X S, ZHU Y Z, PEI B B, *et al.* Effect of FeCl₂ on the pore structure of porous carbon obtained from phenol formaldehyde resin and ethylene glycol. *Materials Letters*, 2018, **215**: 50–52.
- [15] WU X S, SU R H, ZHU Y Z, *et al.* Pore structure control of porous carbon obtained from phenol formaldehyde resin and ethylene glycol: the effect of H₃BO₃ on the pore structure. *RSC Advances*, 2019, **9**(8): 4203–4209.
- [16] WU X S, SU R H, PEI B B, *et al.* Pore structure control of porous carbon via the synergistic effect of boric acid and divalent metal iron salt. *Materials Letters*, 2019, **255**: 126539.
- [17] BEHRENDT D, SINGH M. Effect of carbon preform pore volume and infiltrants on the composition of reaction-formed silicon carbide materials. *J. Mater. Synth. Process.*, 1994, **2**(2): 117–123.
- [18] WANG Y, TAN S, JIANG D. The effect of porous carbon preform and the infiltration process on the properties of reaction-formed SiC. *Carbon*, 2004, **42**(8/9): 1833–1839.
- [19] HILLIG W B. Melt infiltration approach to ceramic matrix composites. *Journal of the American Ceramic Society*, 1988, **71**(2): 96–99.
- [20] XU S J, QIAO G J, WANG H J, *et al.* Microstructure evolution and reaction mechanism of microporous carbon derived SiC ceramic. *Journal of Inorganic Materials*, 2009, **24**(2): 291–296.
- [21] SUYAMA S, KAMEDA T, ITOH Y. Development of high-strength reaction-sintered silicon carbide. *Diamond and Related Materials*, 2003, **12**(3–7): 1201–1204.