

سنتر و بررسی خواص پودر نانومتری سیلیکون کارباید به روش سل ژل

ابوالحسن نجفی^{۱*}، فرهاد گلستانی فرد^۲، حمیدرضا رضایی^۲ و ناصر احسانی^۳

۱- دانشجوی دکتری، دانشکده مهندسی مواد و متالورژی، دانشگاه علم و صنعت ایران

۲- استاد، دانشکده مهندسی مواد و متالورژی، دانشگاه علم و صنعت ایران

۳- دانشیار، دانشکده مواد و تکنولوژی ساخت، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، ایران

*ab_najafi@iust.ac.ir

(تاریخ دریافت: ۱۳۹۰/۰۲/۰۶، تاریخ پذیرش: ۱۳۹۰/۰۲/۲۵)

چکیده

اخیرا تکنیک‌های جدید و پیشرفته‌ای در جهت سنتز پودرهای نانومتری مطرح شده است که تکنیک سل ژل یکی از روش‌های جدید و نو جهت سنتز نانوپودرهای سرامیکی می‌باشد. در این روش می‌توان β -SiC را با استفاده از آلکوکسیدها و منابع کربنی سنتز نمود. مزیت‌های این روش شامل خلوص بالا، افزایش اکتیویته شیمیایی، عدم نیاز به امکانات پیچیده و امکان مخلوط سازی در حد ابعاد مولکولی می‌باشد. در این تحقیق فرایند سنتز نانوپودر SiC با استفاده از TEOS و رزین فنولیک بررسی گردید. همچنین به منظور بررسی خواص سل اثر pH بر زمان ژلاسیون بررسی گردید. در ادامه پس از سنتز نمونه‌های لازم، عملیات حرارتی در دماهای ۷۰۰، ۱۴۰۰ و ۱۵۰۰ °C در کوره تیوبی و اتمسفر آرگون انجام گردید. توزیع اندازه ذرات با استفاده از دستگاه آنالیز لیزری بررسی شد. همچنین با استفاده از بررسی‌های فازی و ریزساختاری توسط پراش پرتو ایکس (XRD) و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) از نمونه‌های عملیات حرارتی شده، دمای بهینه واکنش سنتز پودر نانوپودر SiC و اندازه آگلومره‌های احتمالی به دست آمد و در آخر اندازه و شکل ذرات در مطالعات تصاویر توسط میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) بررسی گردید.

واژه‌های کلیدی:

سنتز نانوپودر، سل - ژل، مواد افزودنی، نانومواد، تترا اتوکسی سیلان، β -SiC

۱- مقدمه

کاربرد سیلیسیم در دو شکل بلوری مختلف وجود دارد، یکی کاربرد سیلیسیوم مکعبی به نام β -SiC و دیگری یک سری از شکل‌های هگزاگونال به نام α -SiC. کاربرد سیلیسیوم مکعبی تنها در زیر دمای ۲۱۰۰ °C تهیه می‌گردد و ساختار آن FCC و شبیه ساختار بلند روی است. کاربرد سیلیسیوم غیر مکعبی در بالاترین دمای تشکیل کاربرد سیلیسیوم به وجود می‌آید و دارای ترکیبات مختلفی است [۱].

امروزه اهمیت و کاربرد کاربردهای دیرگداز سریعا در حال رشد است و این امر نه تنها از جنبه تجاری بلکه بر اساس کاربردهای دیرگدازی و استحکام آنها از قبیل ابزارهای برشی و ساینده می‌باشد. کاربردهای دیرگداز دارای سختی و مقاومت بالا در برابر سایش بوده و نقطه ذوب بالایی دارند و از لحاظ شیمیایی خنثی هستند. کاربرد سیلیسیم (SiC) یکی از سرامیک‌های غیر اکسیدی می‌باشد که دارای کاربردهای صنعتی وسیع است.

کننده‌های سطحی توانستند ذرات نانو سیلیکا را سنتز کنند [۷]. جین وانگلی^۲ و همکارانش توانستند از طریق تکنیک سل - ژل و احیای کربوترمال و با استفاده از مواد پیش سازنده SiO_2 و رزین فنولیک ذرات پودری SiC را سنتز کنند [۸].

آنچه که مشخص است این است که فعالیت‌های فراوانی در این زمینه انجام شده است اما در این تحقیق سعی بر آن است که با انتخاب مواد پیش سازنده مناسب و کنترل پارامترهای سنتز، به محصول سرامیکی $\beta\text{-SiC}$ با خواص بسیار پیشرفته دست پیدا نمود. نوآوری در این تحقیق، کنترل همزمان پارامترهای سنتز که شامل pH، دمای سنتز، استفاده از پراکنده ساز بسیار قوی APC در حین فرایند سل - ژل بود که این شرایط منجر به تولید محصول بسیار خالص با ابعادی در حد ۵۰ - ۳۰ نانومتر و سطح ویژه بسیار بالا گردید.

۲- مواد و روش تحقیق

جهت تهیه نمونه‌ها از تترا اتوکسی سیلان (Merck Ag 20°C , TEOS, 208.33 g/mol, 0.934 g/cm³ at) (Germany) به عنوان منبع سیلیکون، از رزین فنولیک (Resol, RIL 800 Resitan Co, Iran) به عنوان منبع کربنی، از اتانول و استون (Merk Ag Germany) به عنوان حلال پیش سازنده‌ها و از اسید کلریدریک (HCl, Merk AG Germany) به عنوان کاتالیزور استفاده شد. روش انجام فرآیند در شکل (۱) آورده شده است. همان‌طور که در فلوجارت مشاهده می‌شود ابتدا محلول ۶۰ ml تترا اتیل اورتوسیلیکات همراه با ۴۰ ml آب و ۳۰ ml اتانول تهیه گردید. سپس رزین فنولیک که در ۱۰۰ ml استون رقیق شده بود، به محلول فوق اضافه شد. محلول تحت سیستم برگشت پذیر (reflux) بر روی یک همزن مغناطیسی به مدت لازم کاملاً هموژن و یکنواخت گردید. در این مدت pH محلول در حین یکنواخت‌سازی سل با اضافه کردن مقادیر لازم کاتالیزور کاملاً کنترل می‌شد. در مرحله بعد برای پایدارسازی محلول، مقادیر لازم فعال کننده سطحی اضافه شد (APC, ۰,۰۵ mol/lit). برای کامل شدن واکنش‌های هیدرولیز و

امروزه اهمیت تهیه محصولات کاربردی نانو سایز بیش از گذشته آشکار شده است. دلایل این امر را می‌توان در آسان‌تر بودن زینتر ذرات کاربردی دانه ریز، عدم نیاز به دما و فشارهای بالا جهت زینتر، عدم نیاز به افزودنی‌های کمک زینتر، امکان انجام زینترینگ در حالت جامد، کنترل بهتر مورفولوژی و ریزساختار و افزایش سطح مخصوص و قابلیت واکنش پذیری آنها در حالت نانو سایز دانست [۳ و ۲].

در حال حاضر استفاده از روش‌های جدید به ویژه روش سل ژل در این زمینه اهمیت بسیاری یافته است. از مزایای این روش می‌توان به خلوص بالا، افزایش اکتیویته شیمیایی، عدم نیاز به امکانات پیچیده، افزایش قابلیت سینتر مواد، قابلیت دستیابی به مقادیر بالای تولید، قابلیت کنترل خواص و مورفولوژی، امکان مخلوط‌سازی در حد ابعاد مولکولی، امکان تولید ذرات بسیار کوچک با قطر یکسان، امکان ساخت ذرات با سطح مخصوص بسیار بالا و قابلیت کنترل و کاهش مواد اولیه واکنش نکرده در محصول نهایی نام برد [۴].

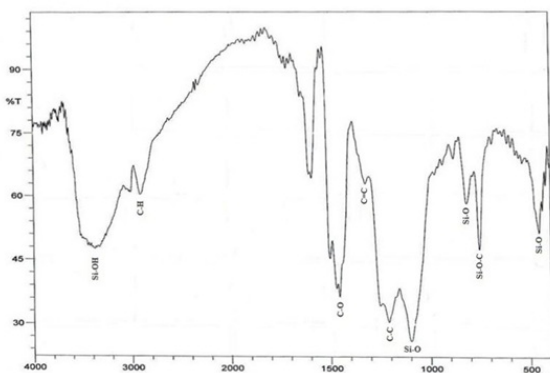
تحقیقات نشان داده است عوامل مختلفی در شرایط سنتز وجود دارد که شامل نسبت $\text{H}_2\text{O}/\text{Si}$ ، نوع کاتالیزور، حلال، دما و فشار است که تمام این عوامل باعث تغییر در ساختار و خواص محصولات پلی سیلیکات می‌شود [۵]. از معادلات فرایندی سل ژل مشهود است که ساختار سیلیکات با واکنش‌های هیدرولیز و چگالش تکامل می‌یابد. به دلیل اینکه شکل، اندازه و میزان ذرات سیلیکاتی از نحوه انجام این واکنش‌ها به وجود می‌آید، سوال‌های اساسی مربوط به هیدرولیز و چگالش در این مواد در رابطه با عوامل فیزیکی و شیمیایی که انجام این واکنش‌ها را تحت شرایط مختلف تحت تاثیر قرار می‌دهند مطرح می‌شود. تحقیقات زیادی در حوزه سنتز پودر SiC و خواص آن انجام شده است که به چند مورد اشاره می‌شود. استفاده از فعال کننده‌های سطحی جهت پایدار کردن ذرات پیش‌سازنده در داخل سوسپانسیون، یکی از اهداف تحقیقاتی بسیار نو و جدید در حوزه سنتز نانو مواد SiC است [۶].

آریاگادا^۱ و همکارانش با استفاده از نسبت‌های مختلف فعال

بدین منظور از کوره کربولایت ۱۶۰۰ تحت اتمسفر آرگون با شار ۱۰۰ ml/min استفاده گردید. به منظور بررسی و تشخیص نوع پیوندهای موجود بین اجزاء در نمونه‌ها از دستگاه (FTIR, SHIMADZU 8400S) ساخت کشور ژاپن در محدوده‌ی طول موج ۴۰۰ - ۴۰۰۰ cm⁻¹ استفاده گردید. برای اندازه‌گیری توزیع اندازه ذرات از دستگاه HORIBA LB550 استفاده شد برای تعیین نوع فازها در دماهای سنتر مورد نظر از تکنیک پراش پرتو ایکس (XRD) و دستگاه Philips Xpert ساخت هلند استفاده گردید. اشعه ایکس تولید شده توسط این دستگاه Cu-Kα با طول موج ۱/۵۴ Å می‌باشد. به منظور بررسی شکل ذرات و آنالیز سطحی، از میکروسکوپ الکترونی LEO 1455VP مدل روبشی ساخت انگلستان استفاده شد. برای تعیین اندازه، شکل ذرات و توزیع آنها از میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) مدل Philips CM200 ساخت هلند استفاده گردید.

۳- نتایج و بحث

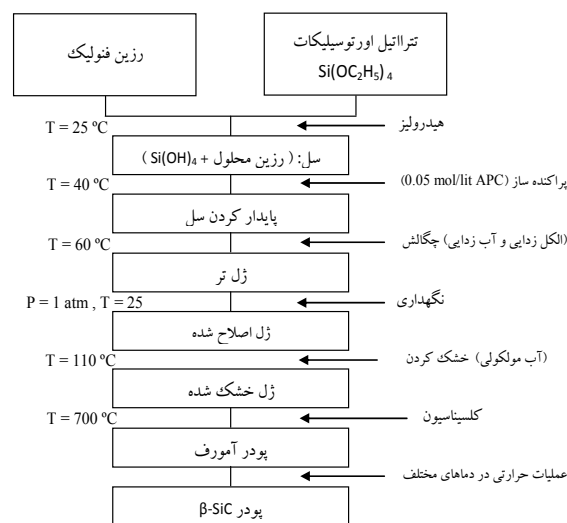
شکل (۲) طیف FT-IR از ماده پودری خشک شده در دمای ۱۱۰°C را نشان می‌دهد همان‌طور که در شکل (۲) ملاحظه می‌گردد در عدد موج‌های ۱۰۹۰، ۸۰۰، ۴۹۸، ۳۰۰ cm⁻¹ باندهای سیلوکسان (Si-O-Si) مشاهده می‌شود که این پیوندها از واکنش هیدرولیز و چگالش کامل آلکوکسیدهای سیلیکون بدست آمده است.



شکل (۲): طیف FTIR از ماده سنتر شده

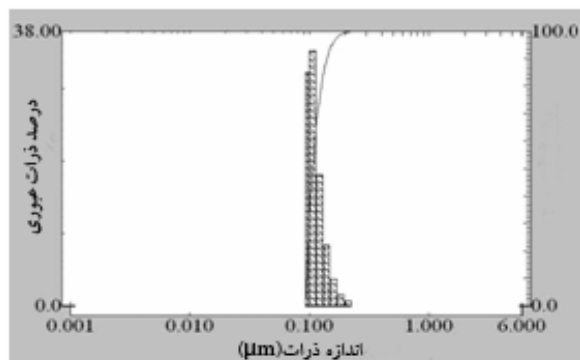
ادامه‌ی تشکیل ذرات Si(OH)_4 ، محلول الکل زدایی شد که این فرآیند در دمای حدود ۴۰°C انجام گردید. در اثر کم شدن الکل، محلول توسط آب رقیق شد تا با افزایش غلظت، به محلول شوک وارد نشده و زودتر از حد معمول تبدیل به ژل نگردد. در این مرحله، محلول شامل ذرات یکنواخت و بسیار ریز از Si(OH)_4 و رزین می‌باشد. در ادامه با افزایش دما و گذشت زمان در اثر واکنش چگالش (آب زدایی و الکل زدایی) مونومرها به هم پیوسته و تشکیل پلیمرهای با پیوند سیلوکسان (= Si - O - Si =) می‌دهد.

این پلیمرها به هم پیوسته و یک ساختار زنجیره‌ای که فاز مایع در داخل آن محبوس شده است، تشکیل می‌دهند. فاز کربنی نیز کاملاً هموزن در ابعاد مولکولی در داخل ساختار پلیمر فرورفته است. پودر حاصل دارای سطح مخصوص بسیار بالا و کاملاً نرم است.



شکل (۱): فلوجارت انجام فرآیند

در ادامه به منظور خارج کردن آب ساختاری (پیوندی) و مواد آلی، ژل پودری شکل تحت عملیات حرارتی (پیرولیز) قرار گرفت. پیرولیز در دمای ۷۰۰ درجه سانتی‌گراد و زمان ۱ ساعت انجام شد. در این مرحله پودر با سطح مخصوص بسیار بالا و آمورف بدست آمد. سپس در دماهای مختلف ۱۴۰۰، ۱۴۵۰، ۱۵۰۰، پودر پیرولیز شده تحت عملیات حرارتی قرار گرفت



شکل (۴): میانگین اندازه ذرات پودر سنتز شده β -SiC پس از پخت در دمای 1500°C

بنابراین در دماهای پایین جوانه زنی و رشد بسیار اندک است و میانگین توزیع اندازه ذرات کمتر از دماهای بالاتر می‌باشد. اما با افزایش دما سینتیک یا سرعت واکنش تولید گاز SiO_2 بالاتر رفته و در نهایت سرعت واکنش تولید SiC بیشتر می‌شود [۱۱]. در این راستا راسیت کک^۳ و همکارانش پودر β -SiC را از طریق مکانیزم احیای کربوترمال در دمای 1400°C با میانگین توزیع ابعاد $0/3 - 0/1$ میکرون سنتز نمودند [۱۲]. در تحقیق حاضر با کنترل پارامترهای ذکر شده اندازه ذرات به کمتر از 0.5 نانومتر رسیده است.

شکل (۵) الگوهای پراش اشعه X حاصل از نمونه حرارت داده شده در دمای پیرولیز 700°C درجه‌ی سانتی‌گراد (الف) و دماهای 1400°C ، 1450°C و 1500°C (ب) را نشان می‌دهد.

به طور کلی عملیات حرارتی و یا پیرولیز پیش ماده‌های ژلی در دمای 700°C تحت اتمسفرهای خنثی مانند آرگون باعث تشکیل نوعی ساختار آمورف سیلیس حاوی کربن می‌گردد که این پودر، شیشه آلی کاربیدی نام دارد. بنابراین محصول به دست آمده در شکل (۵-الف) شامل پودر کاملاً آمورف با سطح مخصوص بسیار بالا با ترکیبات کربن و SiO_2 است [۱۳].

در ادامه پودر پیرولیز شده تحت عملیات حرارتی در دماهای 1400°C و 1500°C در مدت ۱ ساعت قرار گرفت. همانطور که در شکل (۵-ب) ملاحظه می‌گردد تشکیل جوانه‌های β -SiC در دمای 1400°C امکان پذیر است.

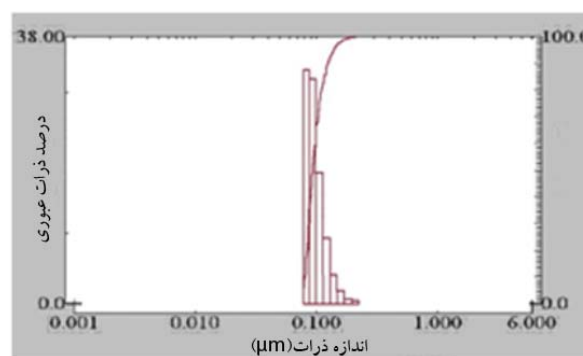
یک نوار جذبی در عدد موج حدود 3200 cm^{-1} دیده می‌شود که مربوط به گروه‌های عاملی OH پیوندی که با اتم Si پیوندهای (Si-OH) را تشکیل داده‌اند.

پیوندهایی که مربوط به رزین فنولیک هستند و شناسایی شده‌اند شامل پیوند C-H مربوط به باندهای متیلن در عدد موج 2920 cm^{-1} ، پیوندهای C-C و C-O در محدوده عدد موج $1200-1456\text{ cm}^{-1}$ و پیوندهای دوگانه C=C و حلقه‌های

آروماتیک در محدوده عدد موج 1593 cm^{-1} می‌باشد [۹].

عامل بسیار مهمی که در این شکل دیده می‌شود اتصال Si-O-C در عدد موج 754 cm^{-1} می‌باشد که از اتصال اتم‌های کربن موجود در رزین فنولیک با پیوندهای (Si-O) موجود در TEOS هیدرولیز و چگالش شده، تشکیل شده است [۱۰].

شکل‌های (۳) و (۴) به ترتیب میانگین اندازه ذرات پودر سنتز شده β -SiC را پس از پخت در دماهای 1400°C و 1500°C نشان می‌دهد. با توجه به منابع مطالعاتی در دمای پایین (کمتر از 1500°C) جوانه زنی فاز β -SiC کمتر صورت گرفته است. این موضوع توجیه واکنش تولید بر اساس مکانیزم واکنش فاز جامد-گاز است. یعنی ابتدا ذرات SiO_2 آمورف تبدیل به فاز گازی شده و سپس با فاز جامد کربنی برهمکنش می‌کند و ذرات SiC را تشکیل می‌دهد.

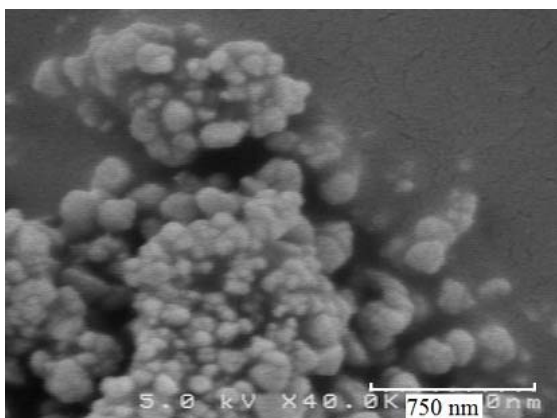


شکل (۳): میانگین اندازه ذرات پودر سنتز شده β -SiC پس از پخت در دمای 1400°C

همان‌طور که در این تصویر مشهود است پودرهای سنتز شده با سطح مقطع یکسان در اندازه‌های تک سایز وجود دارد در این تصویر اندازه آگلومره‌های تشکیل شده احتمالی تقریباً در اندازه‌های کمتر از ۱۰۰ نانومتر می‌باشد.

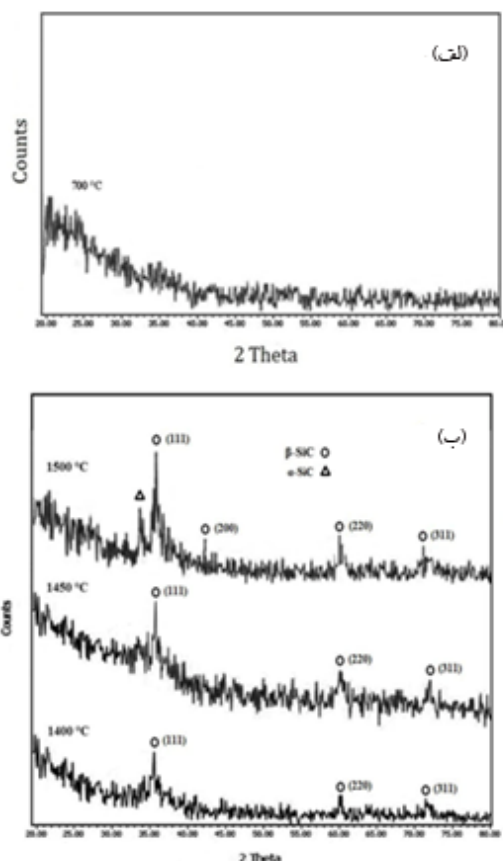
ویکس-گوتزل^۴ و همکارانش پودر β -SiC را در دمای 1500°C سنتز کردند به طوری که در پایان فرایند هیچ پیک اضافی مبنی بر تشکیل فاز کریستوبالیت و یا فاز کربن اضافی در الگوهای XRD مشاهده نشد [۱۵] در تحقیق حاضر نتایج مشابه با ویکس-گوتزل از طریق فرآیند سل ژل به دست آمد.

شکل (۶) تصویر تهیه شده توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) حاصل از نمونه حرارت داده شده در دمای 1500°C را نشان می‌دهد.



شکل (۶): تصویر تهیه شده توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) حاصل از نمونه حرارت داده شده در دمای 1500°C

شکل (۷) تصویر میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM/BF) از پودر سنتز شده در دمای 1500°C را نشان می‌دهد. همان‌طور که ملاحظه می‌شود اندازه ذرات در یک محدوده باریک ($20\text{--}30\text{ nm}$) سنتز شده‌اند و سطح مقطع آنها کروی بوده و الگوی تفرق این پودرها نشان می‌دهد که پودرهای سنتز شده پلی کریستال بوده و کاملاً ریزدانه و در حد ابعاد نانومتری می‌باشند.

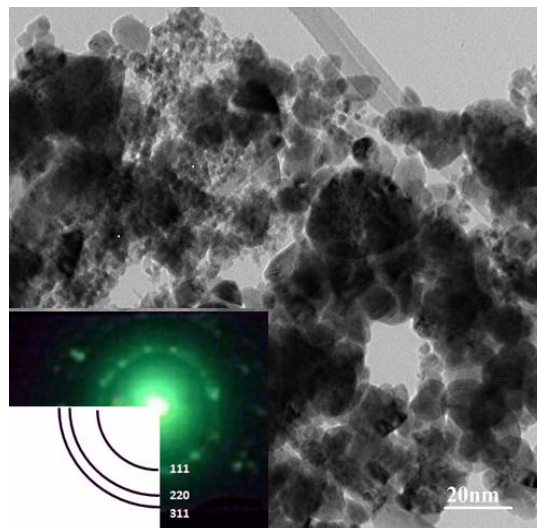


شکل (۵): الگوهای پراش اشعه حاصل از نمونه حرارت داده شده در دماهای 700°C ، 1400°C ، 1450°C و 1500°C

از طرفی شدت پیک‌های حاصله ضعیف است و این موضوع بیانگر سرعت پایین واکنش تولید SiC در این دما می‌باشد. بنابراین برای تشکیل بهتر و کاملتر ذرات نانو SiC کریستالی دمای سنتز تا 1500°C افزایش داده شد. همان‌طور که ملاحظه می‌گردد در دمای 1500°C نسبت به دمای 1400°C واکنش سنتز پیشرفت بیشتری داشته است و شدت پیک‌های تشکیل شده در این دما نسبت به دمای 1400°C بیشتر است.

الگوی XRD از پودر تهیه شده در دمای 1500°C و در اتمسفر آرگون نشان می‌دهد که پیک اصلی پودر در زاویه‌های تفرق 2θ برابر با $60/1$ ، $41/3$ ، $35/6$ ، $72/12$ تشکیل شده است. این زوایا در صفحات تفرق (۱۱۱)، (۲۰۰)، (۲۲۰) و (۳۱۱) که متعلق به فاز β -SiC می‌باشد اتفاق افتاده است [۲ و ۱۴].

SiC در این دما می‌باشد. اما با افزایش دما تا 1500°C واکنش سنتز پیشرفت بیشتری داشته و شدت پیک‌های تشکیل شده در این دما نسبت به دمای 1400°C بیشتر است. با توجه به تصاویر ریزساختاری میکروسکوپ الکترونی (SEM) ملاحظه می‌گردد که اندازه آگلومره‌های احتمالی تشکیل شده کمتر از 100 نانومتر است. تصاویر تهیه شده توسط میکروسکوپ الکترونی عبوری از پودر سنتز شده نشان داد که اولاً مورفولوژی و شکل ظاهری پودرهای β -SiC متحدالشکل بوده و دارای سطح مقطع کروی می‌باشد. ثانیاً پودرهای سنتز شده پلی کریستال بوده و میانگین اندازه آنها بسیار ریزدانه و در ابعاد نانومتری می‌باشد.



شکل (۷): تصویر تهیه شده توسط TEM/BF از پودر سنتز شده در دمای 1500°C به مدت ۱ ساعت

۴- نتیجه گیری

با بررسی اثر pH بر زمان ژلاسیون ملاحظه شد که در شرایط اسیدی میزان چگالش کلی در pHهای حدود ۳ حداقل و در pHهای میانی (قبل از ۵) حداکثر است. با توجه به آنالیز FTIR انجام شده مشخص شد که گروه‌های عاملی OH - پیوندی که بر روی سطح باندهای سیلوکسان (Si-O-Si) قرار گرفته‌اند در محدوده 3200 cm^{-1} وجود دارند. با توجه به نتایج حاصل از آنالیز اندازه ذرات PSA و میانگین اندازه ذرات پودر سنتز شده β -SiC پس از پخت در دماهای 1400°C و 1500°C مشخص شد که در دمای پایین (کمتر از 1500°C) جوانه زنی فاز β -SiC کمتر صورت گرفته و میانگین توزیع اندازه ذرات تا حدودی افزایش یافته است.

آنالیزهای XRD مشخص نمودند که نمونه پیرولیز شده در دمای 700°C دارای نوعی ساختار آمورف سیلیسی حاوی کربن است که اصطلاحاً به این پودر، شیشه آلی کاربردی می‌گویند. این محصول پودری کاملاً آمورف با سطح مخصوص بسیار بالا است. الگوهای پراش اشعه X حاصل از نمونه حرارت داده شده در دمای 1400°C نشان می‌دهد که شدت پیک‌های حاصله ضعیف است و این موضوع بیانگر سرعت پایین واکنش تولید

۵- مراجع

- [1] H. O. Pierson, Handbook of Refractory Carbides and Nitrides, Noyes Publications, 1996.
- [2] L. Shi, H. Zhao, Y. Yan, Z. Li, C. Tang, "Synthesis and Characterization of Submicron Silicon Carbide Powders with Silicon and Phenolic Resin", Powder Technology, Vol. 169, PP. 71-76, 2006.
- [3] Y. J. Lin, C. M. Chuang, "The Effects of Transition Metals on Carbothermal Synthesis of β -SiC Powder." Ceramics International, Vol. 33, PP. 779-784, 2007.
- [4] I. S. Seog, C. H. Kim, "Preparation of Monodispersed Spherical Silicon Carbide by the Sol-gel Method" Journal of Materials Science, Vol. 28, PP. 3277-3282, 1993.
- [5] D. Avnir, V. R. Konfman, "Alcohol is an Unnecessary Additive in the Silicon Alcoxide sol Gel Process", Journal of Non-Crystalline Solid, PP. 181-182, 1987.
- [6] J. Boucle, N. Herlin-Boime, A. Kassiba, "Influence of Silicon and Carbon Excesses on the Aqueous Dispersion of SiC Nanocrystals for Optical Application", Journal of Nanoparticle Research, Vol. 7, PP. 275-285, 2005.
- [7] F. J. Arriagada, K. Osseo-Asare, H.E. Bergna, "Colloidal Silica: Fundamentals and Applications", 3rd edition, Taylor and Francis, New York, 2006.
- [8] J. Li, J. Tian, L. Dong, "Synthesis of SiC Precursors By a Two-Step Sol-Gel Process And Their Conversion to SiC Powders", Journal of the European Ceramic Society, Vol. 77, PP. 1853-1857, 2000.
- [9] J. Wang, H. Jiang, N. Jiang, Study on the Pyrolysis of Phenol-Formaldehyde (PF) Resin and Modified PF Resin, Thermochimica Acta, 496 (2009) 136-142.

- [13] P. Colombo, M. Modesti, "Silicon Oxycarbide Foams from a Silicone Pre ceramic Polymer and Polyurethane", Journal of Sol-Gel Science and Technology, Vol. 14, PP. 103-111, 1999.
- [14] L. Tong, R. G. Reddy, "Thermal Plasma Synthesis of SiC Nano-Powders/Nano-Fibers." Materials Research Bulletin, Vol. 41, PP. 2303-2310, 2006.
- [15] C. Vix-Guterl, I. Alix, P. Ehrburger, "Synthesis of Tubular Silicon Carbide (SiC) From A Carbon-Silica Material By Using A Reactive Replica Technique: Mechanism Of Formation of SiC", Acta Materialia, Vol. 52, PP. 1639-1651, 2004.
- [10] A. Najafi, F. Golestani-Fard, H. R. Rezaie, N. Ehsani, "Effect of APC Addition On Stability Of Nanosize Precursors In Sol-Gel Processing of SiC Nanopowder", Journal of Alloys and Compounds, Vol. 505, PP. 692-697, 2010.
- [11] U. Setiowati, S. Kimura, "Silicon Carbide Powder Synthesis from Silicon Monoxide and Methane." J. Am. Ceram. Soc, Vol. 80, No. 3, PP. 757-60, 1997.
- [12] R. Koc, G. Glatzmaier, J. Sibold, " β -SiC Production By Reacting Silica Gel With Hydrocarbon Gas", Journal of Material Science, Vol. 36, PP. 995-999, 2001.

۶- پی نوشت

-
- 1- Ariagada
 - 2- Jinwangli
 - 3- Rasit Koc
 - 4- Vix-Guterl