

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 737 677**

51 Int. Cl.:

C04B 35/117 (2006.01)

C04B 35/626 (2006.01)

C04B 35/56 (2006.01)

C04B 35/657 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **25.07.2012 PCT/JP2012/068777**

87 Fecha y número de publicación internacional: **07.03.2013 WO13031435**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **25.07.2012 E 12827582 (3)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **03.07.2019 EP 2749549**

54 Título: **Composición de oxicarbonuro de aluminio, proceso de preparación y material refractario**

30 Prioridad:

02.09.2011 JP 2011191830

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

15.01.2020

73 Titular/es:

**KROSAKIHARIMA CORPORATION (100.0%)
1-1, Higashihama-machi Yahatanishi-ku
Kitakyushu-shi, Fukuoka 806-8586, JP**

72 Inventor/es:

**AKAMINE, KEIICHIRO y
YOSHITOMI, JOKI**

74 Agente/Representante:

VALLEJO LÓPEZ, Juan Pedro

Observaciones:

**Véase nota informativa (Remarks, Remarques o
Bemerkungen) en el folleto original publicado por
la Oficina Europea de Patentes**

ES 2 737 677 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Composición de oxycarburo de aluminio, proceso de preparación y material refractario

5 Campo técnico

La presente invención se refiere a una composición de oxycarburo de aluminio utilizable como material cerámico o refractario o una materia prima para la misma, a un método de preparación para la composición de oxycarburo de aluminio y a un material refractario que usa la composición de oxycarburo de aluminio.

10

Antecedentes

Como oxycarburo de aluminio, se conocen los siguientes dos tipos: Al_2OC y Al_4O_4C . En particular, el Al_4O_4C se caracteriza por su estabilidad a altas temperaturas, efecto anti-oxidación, excelente resistencia a la corrosión y bajo coeficiente de expansión térmica. Se espera como material refractario o cerámico o como materia prima para el mismo, en el futuro. Especialmente, se espera Al_4O_4C como materia prima para un material refractario que contiene carbono, como material refractario a base de alúmina-carbono o un material refractario a base de magnesia-carbono, utilizado como material refractario para su uso con metal fundido como hierro fundido o acero.

15

Como método para preparar una composición de oxycarburo de aluminio que contiene dicho Al_4O_4C (oxycarburo de aluminio), el siguiente Documento no de Patente 1 describe un método en el que la alúmina y el grafito se someten a un tratamiento térmico en una atmósfera de argón. Específicamente, después de añadir etanol a alúmina con un tamaño de partícula promedio de $0,1 \mu m$ y reactivo de grafito con un tamaño de partícula de $45 \mu m$ o menos, se mezclan en un mortero de ágata y a continuación se secan. Un polvo (2 g) de la mezcla se pone en un crisol de grafito y se quema a $1700^\circ C$ en un horno eléctrico evacuado previamente, mientras se suministra gas argón al mismo. El siguiente Documento no de Patente 2 describe un método para preparar una composición de oxycarburo de aluminio utilizando un horno de arco. Sin embargo, el Documento no de Patente 2 menciona que, junto con un aumento en la cantidad de carbono en la composición de oxycarburo de aluminio obtenida por el método de preparación descrito, se forma Al_4C_3 reactivo con agua en una cantidad mayor.

20

25

30

Por otro lado, el siguiente Documento de Patente 1 describe una técnica para suprimir la formación de Al_4C_3 , en el que una materia prima a base de carbono y alúmina se mezclan homogéneamente para eliminar una dispersión en el componente C.

35

Sin embargo, se sabe que en la atmósfera ambiente, el Al_4O_4C se oxida a aproximadamente $850^\circ C$ y se transforma en alúmina. Particularmente, se oxidará en los casos en que, como materia prima, se utiliza Al_4O_4C que tiene granos de cristal finos para un material refractario. Por lo tanto, es difícil mantener los efectos ventajosos, como la resistencia a la oxidación, la resistencia a la corrosión y el bajo coeficiente de expansión térmica, durante un largo tiempo.

40

Lista de documentos de la técnica anterior**Documentos de Patente**

45 Documento de Patente 1: WO 2010/113972 A

El documento JP 09-295857 A describe un ladrillo que contiene carbono que contiene oxycarburo de aluminio.

El documento EP 2415732 A1 describe una composición de oxycarburo de aluminio y un proceso para prepararla.

50

Documentos no de Patente

Documento no de Patente 1: REFRACTORIES, vol. 59, pág. 288, 2007

55 **Documento no de Patente 2:** REFRACTORIES, vol. 35, p. 316, 1983.

En la Revista de la Sociedad de Cerámica de Japón, vol 115, n.º 10 (2007), 654-660 J. Zhao et al. describen la influencia de la temperatura de calentamiento, el tiempo de mantenimiento y el tamaño de grano de las materias primas en la síntesis de Al_4O_4C en un proceso de reducción carbotérmica y oxidación de Al_4O_4C .

60

En la Revista de la Sociedad de Cerámica de Japón, Int. Edición, vol. 104, n.º 5 (1996), 373 a 378 S. Zhang et al. abordan las resistencias de hidratación y las reacciones con CO de Al_4O_4C y Al_2OC formadas en refractarios que contienen carbono con Al.

65 Sumario de la invención

Problema técnico

5 El problema técnico a resolver por la presente invención es relacionar una composición de oxcarburo de aluminio capaz de suprimir la oxidación de Al_4O_4C durante el uso para mantener los efectos ventajosos de Al_4O_4C durante un largo tiempo, un método de preparación para la composición de oxcarburo de aluminio, y un material refractario que contiene carbono utilizando la composición de oxcarburo de aluminio.

Solución al problema técnico

10 La presente invención relaciona una composición de oxcarburo de aluminio que comprende cristales de Al_4O_4C y cristales de corindón en los que los cristales de Al_4O_4C y los cristales de corindón se encuentran alternativamente en una relación estratificada, en el que los cristales de Al_4O_4C tienen un diámetro promedio de 20 μm o más, basado en el supuesto de que el área de la sección transversal de cada cristal de Al_4O_4C durante la observación de la composición de oxcarburo de aluminio en una sección transversal arbitraria de la misma se convierte en un diámetro de un círculo que tiene la misma área que el área de la sección transversal.

15 La composición de oxcarburo de aluminio de la presente invención comprende cristales de corindón, además de los cristales de Al_4O_4C . Los cristales de corindón y los cristales de Al_4O_4C se encuentran alternativamente en una relación estratificada. Además de Al_4O_4C y corindón, la composición de oxcarburo de aluminio de la presente invención puede contener Al_2OC , oxinitruro tal como $AlON$, y/o $\gamma-Al_2O_3$, en una pequeña cantidad. Preferiblemente, la composición de oxcarburo de aluminio de la presente invención contiene carbono en una cantidad del 3,2 al 6,3 % en masa.

20 La presente invención también relaciona un método para preparar la composición de oxcarburo de aluminio anterior. El método se caracteriza por que comprende someter una materia prima a base de carbono y una materia prima a base de alúmina a fundición en un horno de arco a una temperatura de aproximadamente 1850 a 2400 °C y a continuación enfriar dentro del horno de arco en el que la velocidad de enfriamiento es igual o inferior a 10 °C/min.

25 Preferiblemente, en el método de la presente invención, se añaden uno o más materiales seleccionados del grupo que consiste en carburo de silicio, carburo de boro, nitruro de aluminio, nitruro de boro y un metal a la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina en una cantidad del 0,2 al 10,0 % en masa con respecto y además de una cantidad total de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina. Más preferiblemente, las materias primas, tales como la materia prima a base de carbono, la materia prima a base de alúmina y el carburo de silicio, se mezclan homogéneamente para permitir que una dispersión en el componente C caiga dentro de ± 10 %.

Efecto de la invención

30 En la presente invención, los cristales de Al_4O_4C tienen un diámetro promedio de 20 μm o más, basado en la suposición de que un área de la sección transversal de cada cristal de Al_4O_4C se convierte en un diámetro de un círculo que tiene la misma área que el área de la sección transversal. Esto hace posible suprimir la oxidación de Al_4O_4C durante el uso para mantener los efectos ventajosos de Al_4O_4C durante mucho tiempo.

Breve descripción de los dibujos

35 La Fig. 1 es una fotografía de una microestructura de una composición de oxcarburo de aluminio según la presente invención (muestra inventiva 2 en la Tabla 1).
La Fig. 2 es una fotografía de una microestructura de una composición de oxcarburo de aluminio convencional (muestra comparativa 1 en la Tabla 1).

Descripción de las realizaciones

40 Una composición de oxcarburo de aluminio de la presente invención comprende cristales de Al_4O_4C , y se caracteriza por que los cristales de Al_4O_4C tienen un diámetro promedio de 20 μm o más, basado en la suposición de que un área de sección transversal de cada cristal de Al_4O_4C durante la observación de la composición de oxcarburo de aluminio en una sección transversal arbitraria de la misma se convierte en un diámetro de un círculo que tiene la misma área que el área de la sección transversal.

45 Los cristales de Al_4O_4C en una composición de oxcarburo de aluminio pertenecen al sistema ortorrómbico, por lo que tienen una estructura cilíndrica o prismática, en muchos casos. Aunque la forma de un cristal en la observación microscópica varía dependiendo de la sección transversal de la observación, cada uno de los cristales de Al_4O_4C en la presente invención tiene una longitud de aproximadamente 10 a 2000 μm en una dirección del lado corto, según se mide observando las estructuras cilíndricas.

50 Tal como se utiliza en esta memoria descriptiva, el término "diámetro promedio basado en el supuesto de que un área de la sección transversal de cada cristal de Al_4O_4C se convierte en un diámetro de un círculo que tiene la

misma área que el área de la sección transversal" significa un valor promedio de los diámetros basado en la suposición de que las áreas de sección transversal respectivas de los cristales de Al_4O_4C se añaden acumulativamente en orden descendente del área de sección transversal hasta que el valor de adición acumulativo sea mayor que la mitad del área total de un campo de observación visual durante la observación al microscopio de la composición de oxocarburo de aluminio y un área de la sección transversal de cada uno de una pluralidad de cristales específicos de los cristales de Al_4O_4C sometidos a la adición acumulativa se convierten en un diámetro de un círculo que tiene la misma área que el área de la sección transversal. El área de sección transversal de cada cristal de Al_4O_4C y el diámetro de un círculo convertido a partir del área de sección transversal se pueden calcular utilizando un software de procesamiento de imágenes.

Por ejemplo, la composición de oxocarburo de aluminio que comprende cristales de Al_4O_4C que tienen un diámetro promedio de $20\ \mu m$ o más se puede preparar sometiendo una materia prima a base de carbono y una materia prima a base de alúmina a fusión en un horno de arco, y a continuación enfriando dentro del horno de arco, es decir, enfriamiento lento.

Hasta ahora, en el campo de los materiales de molienda o similares, en un método para preparar una composición de oxocarburo de aluminio mediante fusión por arco, una mezcla de materias primas se sometía a fusión en un horno de arco, y la mezcla fundida resultante se vertía en un troquel fuera del horno de arco para formar un lingote. Sin embargo, en este método de producción, después de fundirse en el horno de arco, la mezcla fundida se moldea en el troquel fuera del horno de arco. Por lo tanto, la velocidad de enfriamiento después de la fusión llega a ser superior a $10\ ^\circ C/min$, es decir, la mezcla fundida se somete a un enfriamiento rápido, de modo que los cristales de Al_4O_4C resultantes se formen finamente para tener un diámetro promedio de menos de $10\ \mu m$.

De manera diferente, en el caso en que una mezcla de materias primas se somete a fusión en un horno de arco y a continuación se enfría dentro del horno de arco sin ninguna transferencia, la velocidad de enfriamiento es igual o inferior a $10\ ^\circ C/min$, es decir, una mezcla fundida se somete a enfriamiento lento, de modo que los cristales de Al_4O_4C crecen en el curso del enfriamiento lento para tener un diámetro promedio de $20\ \mu m$ o más.

Además de los cristales de Al_4O_4C , la composición de oxocarburo de aluminio comprende cristales de corindón, y en algunos casos contiene además Al_2OC , oxinitruro como $AlON$ y/o $\gamma-Al_2O_3$, en una pequeña cantidad.

Como anteriormente, los cristales de Al_4O_4C tienen un diámetro promedio de $20\ \mu m$ o más. Esto hace posible suprimir la oxidación de Al_4O_4C durante el uso para mantener los efectos ventajosos de Al_4O_4C durante mucho tiempo. Además, cuando la composición de oxocarburo de aluminio contiene cristales de corindón, los cristales de corindón pueden actuar como barrera para suprimir la oxidación del Al_4O_4C , de modo que es posible mantener los efectos ventajosos de Al_4O_4C de manera más fiable durante un largo tiempo. Aunque el límite superior del diámetro promedio de los cristales de Al_4O_4C no está particularmente limitado, preferiblemente se establece en $3\ mm$ o menos, porque un tamaño de partícula utilizable como materia prima agregada para un material refractario generalmente es de aproximadamente $3\ mm$ en una fracción de partícula gruesa.

La composición de oxocarburo de aluminio de la presente invención tiene una microestructura en capas en la que los cristales de Al_4O_4C y los cristales de corindón se encuentran alternativamente en una relación estratificada. Como se ha mencionado anteriormente, se sabe que el Al_4O_4C se oxida en una atmósfera de oxidación a $850\ ^\circ C$ y se transforma en alúmina. Si el Al_4O_4C se oxida y se transforma en alúmina, resulta imposible obtener un efecto de oxidación, un efecto de mejora de la resistencia a la corrosión y un efecto basado en un bajo coeficiente de expansión térmica, que son características innatas del Al_4O_4C . En la microestructura donde los cristales de corindón se encuentran en capas, las capas de cristal de corindón son efectivas para proteger los cristales de Al_4O_4C de la oxidación y son muy efectivas para suprimir la oxidación de toda la composición de oxocarburo de aluminio, de modo que es posible mantener las características anteriores del Al_4O_4C durante un tiempo prolongado.

Preferiblemente, la composición de oxocarburo de aluminio de la presente invención contiene carbono en una cantidad del $3,2$ al $6,3\ %$ en masa. Este contenido de carbono da una indicación de una cantidad de Al_4O_4C contenida en una composición de oxocarburo de aluminio. Específicamente, el contenido teórico de carbono en Al_4O_4C es del $6,52\ %$ en masa. Cuando el contenido de carbono en una composición de oxocarburo de aluminio es del $6,52\ %$ en masa, el contenido de Al_4O_4C en la composición de oxocarburo de aluminio es del $100\ %$ en masa. Si el contenido de carbono en la composición de oxocarburo de aluminio es inferior al $3,2\ %$ en masa, se reduce la cantidad de Al_4O_4C , por lo que es probable que no se puedan obtener de manera suficiente los efectos ventajosos del Al_4O_4C . Por otro lado, si el contenido de carbono es superior al $6,3\ %$ en masa, es más probable que se produzca la formación de carburo de aluminio susceptible a la hidratación, lo que da como resultado una estabilidad microestructural deficiente. Además, la cantidad de cristales de corindón se reduce o es cero, por lo que el efecto de supresión de la oxidación de Al_4O_4C se deteriora, lo que ocasiona dificultades para mantener el Al_4O_4C en una atmósfera de oxidación durante mucho tiempo.

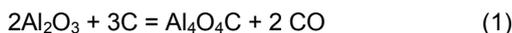
Como se ha mencionado anteriormente, la composición de oxocarburo de aluminio de la presente invención se puede preparar al someter una materia prima a base de carbono y una materia prima a base de alúmina a fundición en un horno de arco y a continuación enfriar (enfriar lentamente) dentro del horno de arco.

5 Como materia prima a base de carbono, es posible utilizar una materia prima a base de carbono que se usa habitualmente como materia prima para un material refractario. Por ejemplo, la materia prima a base de carbono utilizable incluye brea, grafito, coque, negro de humo y resina orgánica en polvo. Entre ellos, como grafito, es posible utilizar grafito escamoso, grafito terroso (amorfo), grafito expandido y/o grafito artificial. Una tasa de contenido de carbono (tasa de contenido de C) de la materia prima a base de carbono puede ser del 90 % en masa o más, preferiblemente, del 95 % en masa o más.

10 Como materia prima a base de alúmina, es posible utilizar una materia prima a base de alúmina que se usa habitualmente como materia prima para un material refractario. Por ejemplo, la materia prima a base de alúmina utilizable incluye alúmina fundida, alúmina sinterizada y/o alúmina calcinada, que se prepara al refinar artificialmente bauxita natural o similar a través de un proceso Bayer o similar, para permitir que la pureza del Al_2O_3 se convierta en el 95 % en masa o más. También es posible usar polvo de bauxita de China, bauxita, arcilla y/o ladrillo en la medida en que la pureza del Al_2O_3 en toda la materia prima a base de alúmina sea preferiblemente del 90 % en masa o más, más preferiblemente, del 95 % en masa o más.

20 En la presente invención, un material refractario que contiene carbono y alúmina, tal como un material refractario a base de alúmina-carbono o alúmina-grafito, se puede usar como materia prima a base de carbono y materia prima a base de alúmina. En este caso, el contenido total de carbono y alúmina con respecto a la totalidad de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina se ajusta al 90 % en masa o más, preferiblemente, al 95 % en masa o más. Además, es preferible que la relación molar de carbono a alúmina ($\text{C}/\text{Al}_2\text{O}_3$) en la totalidad de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina se ajuste a un rango de 0,8 a 2,0.

25 Se forma $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ a través de la siguiente reacción (1). Así, idealmente, la relación molar de la materia prima a base de carbono a la materia prima a base de alúmina se establece en 1,5.



30 El contenido de carbono (contenido de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$) en la composición de oxcarburo de aluminio puede controlarse en cierta medida ajustando el contenido de la materia prima a base de carbono. Sin embargo, en condiciones típicas de fusión, el carbono se oxida para formar una gran cantidad de corindón (Al_2O_3), aunque la razón no está clara. Por otra parte, se produce la formación local de Al_4C_3 y otros problemas.

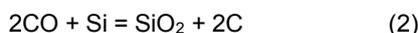
35 Se cree que la formación local de Al_4C_3 se debe a la influencia de una atmósfera de fusión que depende de un tipo de horno de arco, las condiciones de voltaje, etc. Considerando la producción en masa práctica, es necesario usar un horno de arco grande y realizar la fusión a alta tensión o energía eléctrica. En este caso, la atmósfera de fusión se convierte en una atmósfera de oxidación. Por lo tanto, se considera que es menos probable que se forme $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$, y se acelera la formación de corindón (Al_2O_3).

40 Por lo tanto, preferiblemente, se añaden uno o más materiales seleccionados del grupo que consiste en carburo de silicio, carburo de boro, nitruro de aluminio, nitruro de boro y un metal, a la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina en una cantidad del 0,2 al 10,0 % en masa con respecto a y además de una cantidad total de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina, después de lo cual la mezcla obtenida se somete a fusión en el horno de arco.

45 Basado en la adición de un antioxidante tal como un metal de la manera anterior, es posible suprimir la oxidación de la materia prima a base de carbono debido a una atmósfera durante la fusión y el enfriamiento, para inducir de manera eficiente la reacción entre y la fusión de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina, aunque los detalles del mecanismo no están claros. El punto de fusión del $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ se encuentra en una región de alta temperatura de 1850 °C o menos. Por otro lado, se considera que la formación de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ se produce a una temperatura apropiada que varía de 1000 °C (lo que produciría una reacción de sinterización) a 1850 °C (lo que provoca la formación de una fase líquida). Por lo tanto, se requiere que el metal que se añada en la presente invención tenga una afinidad al oxígeno más fuerte que la del carbono, en un rango de temperatura de 1000 °C o más.

55 Se cree que el metal añadido en la presente invención reacciona con el monóxido de carbono generado por una reacción entre la alúmina y el carbono, por ejemplo, una reacción (2) mencionada posteriormente, al carbono inmovilizado que de otro modo desaparecería como monóxido de carbono para ejercer un efecto de aumento del rendimiento del carbono.

60 Cuando se añade silicio como metal, se produce la siguiente reacción (2).



65 El metal que se añadirá en la presente invención se usa en forma de polvo metálico o un blanco de metal sólido, para suprimir la oxidación de la materia prima a base de carbono y $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ debido a una atmósfera durante la fusión

y el enfriamiento (es decir, durante la preparación). Por lo tanto, se utiliza un metal que tiene una afinidad al oxígeno más fuerte que la del carbono, en un rango de temperatura igual o superior a 500 °C a la que comienza la oxidación del carbono, preferiblemente igual o superior a 1000 °C, lo que produciría la formación de Al_4O_4C . Específicamente, por ejemplo, es posible usar uno o más metales seleccionados del grupo que consiste en Si, Mn, Al, Ca, Mg, Zr y Ti. Además, también se puede usar una aleación que contiene uno o más de los metales anteriores. Aunque la pureza del metal o aleación no está particularmente limitada, el metal o aleación preferible tiene una pureza del 90 % o más.

En otra realización de la presente invención, en lugar de o además de un metal, se añaden uno o más seleccionados del grupo que consiste en carburo de silicio, carburo de boro, nitruro de aluminio y nitruro de boro.

Se supone que cada uno de carburo de silicio (SiC), carburo de boro (B_4C), nitruro de aluminio (AlN) y nitruro de boro (BN) ejerce una función de supresión de la oxidación de la materia prima a base de carbono durante la fusión y el enfriamiento debido a una atmósfera, para inducir de manera eficiente la reacción entre y la fusión de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina, como con el metal, aunque los detalles del mecanismo no están claros. Por ejemplo, en el caso de añadir SiC , se supone que el carbono se eluye de manera eficiente en las materias primas fundidas para contribuir a la formación de Al_4O_4C .

Como carburo de silicio, carburo de boro, nitruro de aluminio o nitruro de boro a añadir en la presente invención, es posible usar un tipo que se usa habitualmente como antioxidante para el carbono, o similar, en el campo técnico de materiales refractarios. Aunque su pureza no está particularmente limitada, es preferible que tenga una pureza del 90 % o más.

Preferiblemente, las materias primas en la presente invención, tales como la materia prima a base de carbono, la materia prima a base de alúmina, el metal y el carburo de silicio, se mezclan homogéneamente para permitir que una dispersión en el componente C caiga dentro ± 10 %. Sobre la base de una mezcla preliminar homogénea de las materias primas, es posible aumentar el rendimiento de Al_4O_4C , mientras se suprime la formación de Al_4C_3 .

Como se usa en el presente documento, el término "mezcla homogéneamente (mezcla homogénea)" significa un estado en el que la dispersión se reduce significativamente cuando se toma una muestra de la mezcla de las materias primas. En la presente invención, un índice de la mezcla homogénea está representado por una dispersión en el componente C. Como se usa en el presente documento, el término "dispersión en el componente C" significa una relación (%) de una diferencia entre uno específico de una pluralidad de valores de análisis, y un valor objetivo preestablecido del componente C, al valor objetivo preestablecido, en el que la pluralidad de valores de análisis se obtiene tomando una muestra tres veces de la mezcla de materias primas, y analizando los componentes C respectivos de las mezclas muestreadas, y el valor de análisis específico tiene la mayor diferencia con el valor objetivo preestablecido. La dispersión en el componente C se establece para que caiga, preferiblemente, dentro de ± 10 %, más preferiblemente dentro de ± 5 %. Para lograr una mezcla homogénea, es preferible realizar la mezcla utilizando un mezclador de polvo disponible en el mercado. El término "valor objetivo preestablecido (%)" significa [una relación (%) de la materia prima a base de carbono a la mezcla de las materias primas] x [una tasa de contenido (%) de componente C en la materia prima a base de carbono], en el que la tasa de contenido (%) del componente C en la materia prima a base de carbono es un valor de medición antes de la mezcla.

Como horno de arco, es posible usar un tipo que se usa habitualmente para fundir un material refractario como la magnesia o la alúmina para producir un material refractario. En el horno de arco, la mezcla de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina con otra materia prima añadida según la necesidad, como el metal, se funde. Específicamente, la mezcla se funde a una temperatura de aproximadamente 1850 a 2400 °C. Después de la fusión, la mezcla fundida se enfría para formar un lingote, y el lingote se pulveriza para obtener una composición de oxocarburo de aluminio.

En la presente invención, una relación molar de carbono en la materia prima a base de carbono a alúmina en la materia prima a base de alúmina (C/Al_2O_3) puede controlarse en un rango de 0,8 a 2,0 para controlar una tasa de contenido de Al_4O_4C .

La composición de oxocarburo de aluminio de la presente invención se puede usar adecuadamente como materia prima para un material refractario, en particular, agregado (tamaño de partícula: 0,2 mm o más). Cuando la composición de oxocarburo de aluminio de la presente invención se usa como materia prima para un material refractario, está preferiblemente contenida en una cantidad del 15 al 95 % en masa. Si el contenido de la composición de oxocarburo de aluminio es inferior al 15 % en masa, es probable que los efectos ventajosos de la composición de oxocarburo de aluminio no puedan obtenerse de manera suficiente. Por otro lado, si el contenido es superior al 95 % en masa, se restringe la cantidad de carbono a añadir para reducir el módulo de elasticidad, la cantidad de un metal a añadir como material antioxidante o sinterizado o un antioxidante como un metal, un carburo, un nitruro o un boruro, y la cantidad de resina fenólica a añadir como aglutinante, por lo que resulta difícil obtener características suficientes como material refractario, como resistencia, módulo elástico y resistencia a la oxidación.

65 Ejemplos

5 Las composiciones de oxcarburo de aluminio se produjeron mediante el método de la presente invención diseñado para someter una mezcla de materias primas a fundición en un horno de arco y a continuación enfriamiento (enfriamiento lento) dentro del horno de arco, y mediante el método convencional diseñado para someter el mezcla a fundir en un horno de arco, y a continuación la mezcla fundida resultante se vierte en un troquel fuera del horno de arco y se somete a enfriamiento rápido, y se evaluaron sus características. El resultado de la evaluación se ilustra en la siguiente Tabla 1.

TABLA 1

Materia prima	Nombre	Tamaño de partícula	Diámetro promedio de partícula	Muestra inventiva 1	Muestra inventiva 2	Muestra inventiva 3	Muestra inventiva 4	Muestra inventiva 5	Muestra inventiva 6	Muestra inventiva 7	Muestra inventiva 8	Muestra inventiva 9	Muestra comparativa 1	Muestra comparativa 2
(% en masa)	Alúmina calcinada		50 µm	90,5	88	85	82	81	86	88	88	88	88	88
	Grafito escamoso	Malla 100	150 µm	9,5	12	15	18	19	12	12	12	12	12	12
	AM			+0,5	+0,5	+0,5	+0,5	+0,5	+0,5	-	+0,5	-	-	+0,5
	Si*1													
	SIC*1													
	Relación molar entre materias primas (C/Al ₂ O ₃)			0,9	1,2	1,5	1,9	2,0	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2
	Método de mezcla			Mezcla con mezclador V-Cone durante 5	Sin mezcla	Mezcla con mezclador V-Cone durante 5	Mezcla con mezclador V-Cone durante 5	Sin mezcla	Mezcla con mezclador V-Cone durante 5					
	Variación en el componente C de mezcla			0,4	0,3	0,3	0,35	0,25	11,5	12,5	0,4	0,2	12	0,3
	Método de enfriamiento después de fundir			Enfriamiento lento	Enfriamiento lento	Enfriamiento lento	Enfriamiento lento	Enfriamiento rápido	Enfriamiento rápido					
Características de la composición de oxicarburu de aluminio														
	Peso aparente			3,32	3,18	2,99	2,83	2,76	3,25	3,30	3,27	3,25	3,34	3,29
	Porosidad aparente (%)			3,7	3,6	3,6	3,5	3,5	3,6	3,6	3,7	3,8	3,5	3,8
	Composición química			3,2	4,0	5,0	5,9	6,3	3,6	3,3	3,5	3,6	3,1	3,4
	Fase mineral			49	61	77	90	97	55	51	54	55	48	52
	Corindón (% en masa)			50	38	22	9	2	44	47	44	43	51	46

(continuación)

Características de la composición de oxocarburo de aluminio		Presencia	Ausencia	Ausencia											
Microestructura	Estructura estratificada	20	300	500	800	1000	130	150	110	95	5	5	5		
	Diámetro promedio de $Al_2O_3 \cdot C$ (μm)														
Coeficiente de expansión térmica (%)	Antes del tratamiento térmico 1000 °C	0,57	0,53	0,48	0,43	0,41	0,56	0,58	0,57	0,56	0,59	0,57	0,57		
	Después del tratamiento térmico 1000 °C	0,65	0,60	0,54	0,47	0,43	0,64	0,65	0,65	0,64	0,74	0,73	0,73		
Resistencia a la oxidación (%)	Tasa de transformación Al_2O_3	41	30	25	15	10	38	37	38	39	75	72	72		

*1 : % en masa con respecto y además del 100 % en masa de alúmina calcinada y grafito escamoso

A las relaciones respectivas ilustradas en la Tabla 1, la alúmina calcinada (componente de Al_2O_3 : 99,9 % en masa) y el grafito escamoso (componente de C: 99 % en masa) se pesaron en una cantidad total de 500 kg. En cuanto a las muestras de la invención 1 a 6, 8 y 9 y la muestra comparativa 2, se añadió Al, Si o SiC con respecto a, y además de, un total del 100 % en masa de la alúmina calcinada y el grafito escamoso.

En cuanto a las muestras de la invención 1 a 5, 8 y 9 y la muestra comparativa 2, las materias primas anteriores se combinaron y se mezclaron en un mezclador V-Cone durante 5 minutos. En cuanto a las muestras de la invención 6 y 7 y la muestra comparativa 1, no se realizó el tratamiento de mezcla homogénea. La dispersión en el componente C de la mezcla de materia prima se evaluó mediante el método mencionado anteriormente.

La mezcla de materia prima se puso en un horno de arco de 1000 KVA y se sometió a fusión. A continuación, la mezcla fundida en cada una de las muestras de la invención se sometió a enfriamiento lento sin transferencia al exterior, y la mezcla fundida en cada una de las muestras comparativas se vertió en un troquel fuera del horno de arco. De esta manera, se produjeron lingotes de composiciones de la invención y comparativas de oxocarburo de aluminio. La velocidad de enfriamiento en cada una de las muestras de la invención se ajustó a aproximadamente $0,7\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$, y la velocidad de enfriamiento en cada una de las muestras comparativas se ajustó a aproximadamente $15\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$.

Cada uno de los lingotes producidos de las composiciones de oxocarburo de aluminio se sometió a pulverización y regulación del tamaño de partícula, y a continuación se midió una porosidad aparente y un peso específico aparente de acuerdo con la norma JIS-R2205. Con respecto a una composición química, el contenido de C se midió de acuerdo con la norma JIS-R2011. El contenido de C se evaluó mediante una cantidad total de carbono que es la suma de carbono libre descrito en la norma JIS-R2205 y carbono en carburo de silicio. Específicamente, considerando que la oxidación de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ comienza a una temperatura de $820\text{ }^\circ\text{C}$ o más, el contenido de carbono se evaluó mediante la suma de una cantidad de carbono medida a $900\text{ }^\circ\text{C}$ y una cantidad de carbono en carburo de silicio medida a $1350\text{ }^\circ\text{C}$. El contenido teórico de C en $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ es del 6,52 % en masa.

Se cuantificó una fase mineral mediante un método de referencia interno basado en difracción de rayos X.

Se observó una microestructura de la composición de oxocarburo de aluminio con un microscopio. Como se ha mencionado anteriormente, un diámetro promedio de cristales de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ significa un valor promedio de diámetros basado en la suposición de que las áreas respectivas de la sección transversal de los cristales de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ se añaden acumulativamente en orden descendente del área de la sección transversal hasta que el valor de adición acumulativo sea mayor que la mitad de toda el área de un campo de visión de observación durante la observación microscópica de la composición de oxocarburo de aluminio, y el área de sección transversal de cada uno de una pluralidad de cristales específicos de los cristales de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ sometidos a la adición acumulativa se convierte en un diámetro de círculo que tiene la misma área que el área de la sección transversal.

Una muestra cilíndrica rectangular con un tamaño de $8 \times 8 \times 12\text{ mm}$ se cortó directamente de cada uno de los lingotes, y se midió el coeficiente de expansión térmica en una atmósfera ambiente hasta $1000\text{ }^\circ\text{C}$ mediante análisis termo-mecánico (ATM). Además, para evaluar la relación de mantenimiento del coeficiente de expansión térmica después de la oxidación de la composición de oxocarburo de aluminio, la muestra cilíndrica rectangular de $8 \times 8 \times 12\text{ mm}$ se sometió a un tratamiento de oxidación en una atmósfera ambiente a $1500\text{ }^\circ\text{C}$ durante 3 horas, y se midió el coeficiente de expansión térmica en una atmósfera ambiente de hasta $1000\text{ }^\circ\text{C}$ mediante análisis termo-mecánico (ATM) de la misma manera.

[Fórmula 1]

Tasa de transformación de alúmina = $\frac{[(\text{Cantidad de } \text{Al}_4\text{O}_4\text{C} \text{ antes de la prueba de oxidación} - \text{Cantidad de } \text{Al}_4\text{O}_4\text{C} \text{ después de la prueba de oxidación})/\text{Cantidad de } \text{Al}_4\text{O}_4\text{C} \text{ antes de la prueba de oxidación}] \times 100}{}$

En vista del hecho de que cuando se oxida $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$, se transforma en alúmina (corindón), se evaluó la resistencia a la oxidación calculando una tasa de transformación de alúmina indicativa de una tasa de disminución de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ (tasa de aumento de corindón). La tasa de transformación de alúmina se expresa como la fórmula 1 anterior.

Específicamente, se cortó una muestra que tenía un tamaño de $10 \times 10 \times 10\text{ mm}$ de cada uno de los lingotes y se sometió a un tratamiento de oxidación en una atmósfera ambiente a una temperatura de $1500\text{ }^\circ\text{C}$ durante 3 horas usando un horno rotatorio. A continuación, se midió el contenido de carbono y se calculó la tasa de transformación de alúmina por comparación con el contenido de carbono medido preliminarmente antes de la prueba de oxidación. La composición de oxocarburo de aluminio consiste principalmente en corindón y $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$, y contiene otros componentes en una cantidad extremadamente pequeña. Por lo tanto, se puede calcular un contenido de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ midiendo el contenido de carbono. Por lo tanto, los contenidos de carbono antes y después de la prueba de oxidación se midieron para inferir los contenidos de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ antes y después de la prueba de oxidación, y calcular la tasa de transformación de alúmina.

Como es evidente en la Tabla 1, todas las muestras de la invención en las cuales el diámetro promedio de $\text{Al}_4\text{O}_4\text{C}$ es

de 20 µm o más, son excelentes en cuanto a la resistencia a la oxidación. Por otro lado, las muestras comparativas en las que el diámetro promedio de Al₄O₄C es inferior a 10 µm, son inferiores en términos de resistencia a la oxidación.

5 Con respecto al coeficiente de expansión térmica de la composición de oxocarburo de aluminio oxidada a 1500 °C en una atmósfera ambiente, todas las muestras de la invención 1 a 9 en las que el diámetro promedio de Al₄O₄C es de 20 µm o más, mantienen un bajo coeficiente de expansión térmico. Por otro lado, las muestras comparativas 1 y 2 en las que el diámetro promedio de Al₄O₄C es inferior a 10 µm, tienen un coeficiente de expansión térmico mayor.

10 Una comparación entre la muestra inventiva 2 y la muestra inventiva 6 muestra que el rendimiento (tasa de contenido) de Al₄O₄C mejora al mezclar preliminarmente las materias primas de manera homogénea. Sin embargo, a partir de una comparación entre la muestra inventiva 2 y la muestra comparativa 2, se demuestra que no se puede obtener el efecto de mejorar la resistencia a la oxidación solamente mediante la mezcla preliminarmente homogénea de las materias primas.

15 Una comparación entre cada una de las muestras de la invención 6, 8 y 9 y la muestra de la invención 7 muestra que el rendimiento (tasa de contenido) de Al₄O₄C mejora al añadir un antioxidante como un metal.

20 La Fig. 1 ilustra una microestructura de la muestra inventiva 2, y la Fig. 2 ilustra una microestructura de la muestra comparativa 1. Se ha demostrado que, en la muestra de la invención 2, los cristales de Al₄O₄C en forma cilíndrica tienen un diámetro corto de aproximadamente 50 a 250 µm, y los cristales de corindón en forma cilíndrica tienen un diámetro corto de aproximadamente 30 a 300 µm o crecen co-cristales de corindón-Al₄O₄C mientras se encuentran alternativamente en una relación estratificada. Por otro lado, en la muestra comparativa 1, cada uno de los cristales de Al₄O₄C y los cristales de corindón se forman finamente para tener un diámetro promedio de menos de 10 µm.

25 A continuación, se produjeron tres tipos de materiales refractarios que contienen carbono usando las composiciones de oxocarburo de aluminio de la muestra inventiva 2 y las muestras comparativas 1 y 2, y se evaluaron sus características. Un resultado de la evaluación se ilustra en la siguiente Tabla 2.

30

TABLA 2

			Muestra inventiva 10	Muestra comparativa 3	Muestra comparativa 4
Materia prima (% en masa)	Composición AOC 1*1	3-1 mm	20		
	Composición AOC 1*1	1-0,2 mm	20		
	Composición AOC 2	3-1 mm		20	
	Composición AOC 2	1-0,2 mm		20	
	Composición AOC 3	3-1 mm			20
	Composición AOC 3	1-0,2 mm			20
	Alúmina sinterizada	3-1 mm	10	10	10
		1-0,2 mm 0,074-0 mm	20 27	20 27	20 27
Al metálico		1	1	1	
Grafito escamoso	#200	2	2	2	
Resina fenólica * 4		+5,0	+5,0	+5,0	
Características del material refractario que contiene carbono					
	Contenido de Al ₄ O ₄ C	(% en masa)	24,6	20,3	19,1
	Gravedad específica a granel		3,04	3,08	3,1
	Porosidad aparente	(%)	8,5	8,6	8,8
	Expansión térmica	(%)	+0,53	+0,57	+0,58

(continuación)

		Muestra inventiva 10	Muestra comparativa 3	Muestra comparativa 4
	Índice de corrosión	80	90	95
	Índice de oxidación en fase líquida	78	98	90
	Resistencia al choque térmico (número de ciclos)	4	3	2,5
*1 : Composición del oxcarburo de aluminio de la Muestra inventiva 2 en la Tabla 1 * 2: Composición de oxcarburo de aluminio de la Muestra comparativa 1 en la Tabla 1 *3: Composición del oxcarburo de aluminio de la Muestra comparativa 2 en la Tabla 1 * 4: % en masa con respecto y además del total del 100 % en masa de otras materias primas				

Las diversas materias primas se mezclaron en las relaciones respectivas ilustradas en la Tabla 2 y, después de añadir una resina fenólica como aglutinante en una cantidad del 5 % en masa con respecto a y además de una cantidad total de las materias primas, se sometieron a mezcla y conformado. A continuación, el cuerpo conformado resultante se calentó a una temperatura de 300 °C para producir un material refractario que contiene carbono.

El material refractario que contiene carbono se evaluó en términos de peso específico a granel, porosidad aparente, coeficiente de expansión térmica, resistencia a la corrosión, resistencia a la oxidación, resistencia a la oxidación en fase líquida y resistencia al choque térmico.

El peso específico a granel y la porosidad aparente se evaluaron mediante el método descrito en la norma JIS-R2205. El coeficiente de expansión térmica se evaluó en una atmósfera de nitrógeno hasta 1000 °C mediante el método sin contacto descrito en la norma JIS-R2207-1.

La resistencia a la corrosión se evaluó fundiendo un material de SS y un polvo de óxido de hierro utilizando un horno de inducción de alta frecuencia para preparar escoria sintética con una relación de CaO/Al₂O₃ de 2,2, y sometiendo una muestra a un ensayo de resistencia a la corrosión en la escoria sintética a 1600 °C durante 3 horas para medir la cantidad de desgaste. A continuación, el valor de medición obtenido se convirtió en un valor de índice suponiendo que la cantidad de desgaste de la muestra comparativa 5 en la Tabla 3 mencionada posteriormente es de 100. Un valor menor indica una mejor resistencia a la corrosión.

La resistencia a la oxidación en fase líquida se evaluó fundiendo un material SS utilizando un horno de inducción de alta frecuencia y sometiendo una muestra a una prueba de resistencia a la oxidación en fase líquida en acero fundido a 1600 °C durante 5 horas para medir el espesor de una capa de óxido en una porción de baño de acero. A continuación, el valor de medición obtenido se convirtió en un valor índice asumiendo que el espesor de una capa de óxido de la muestra comparativa 5 en la Tabla 3 mencionada posteriormente es de 100. Un valor más pequeño indica una mejor resistencia a la oxidación en fase líquida.

La resistencia al choque térmico se evaluó repitiendo un ciclo de inmersión de una muestra en acero fundido a 1600 °C durante 3 minutos y sometiendo la muestra a refrigeración por aire, para determinar la calidad en función del número de ciclos antes de que se produjera el pelado (desprendimiento). Específicamente, la resistencia al choque térmico se evaluó mediante un número de ciclo promedio en dos muestras antes de la aparición del pelado. Un valor mayor indica una mejor resistencia al choque térmico.

La Tabla 2 muestra que la muestra inventiva 10 que usa la composición de oxcarburo de aluminio de la muestra inventiva 2 en la Tabla 1 es superior a las muestras comparativas 3 y 4 que usa las muestras respectivas de las composiciones de oxcarburo de aluminio de las muestras comparativas 1 y 2 en la Tabla 1, en términos de resistencia a la corrosión, resistencia a la oxidación en fase líquida y resistencia al choque térmico. En la muestra de la invención 10, el Al₄O₄C se mantuvo durante mucho tiempo sin oxidarse incluso bajo la condición de prueba a alta temperatura. Se considera que el resultado proviene de una excelente resistencia a la corrosión basada en la mejora de la humectabilidad con la escoria, que es una característica del Al₄O₄C. Además, en vista del hecho de que el Al₄O₄C también se mantiene en la prueba de oxidación en fase líquida, se cree que se mejora la resistencia a la oxidación en una región de alta temperatura. Se considera que el efecto de mejora de la resistencia a la oxidación en fase líquida proviene de un alto efecto de supresión de la oxidación basado en una capa densa de Al₂O₃ formada a través de una reacción entre el Al₄O₄C y el FeO. Además, en vista del hecho de que el Al₄O₄C se mantiene bajo los tratamientos térmicos repetitivos a alta temperatura en la prueba de resistencia al choque térmico, se cree que la resistencia al desprendimiento se mejora por el efecto basado en el bajo coeficiente de expansión térmica. En contraste, cada una de las composiciones de oxcarburo de aluminio de las muestras comparativas 3 y 4 se oxidaron y se transformaron en Al₂O₃ bajo la condición de prueba de alta temperatura, en un corto período de tiempo. Se considera que el resultado se debe al deterioro de la resistencia a la corrosión causado por el deterioro de la humectabilidad con la escoria, al deterioro de la resistencia a la oxidación y al deterioro de la resistencia al

desprendimiento causado por el aumento del coeficiente de expansión térmica.

5 A continuación, se produjo un material refractario que contiene carbono que utiliza la composición de oxcarburo de aluminio de la muestra inventiva 5 en la Tabla 1, y se evaluaron sus características. Un resultado de la evaluación se ilustra en la siguiente Tabla 3. En la Tabla 3, la muestra comparativa 5 es un material refractario que contiene carbono que no utiliza una composición de oxcarburo de aluminio.

TABLA 3

		Muestra Inventiva 11	Muestra Inventiva 12	Muestra Inventiva 13	Muestra Inventiva 14	Muestra Inventiva 15	Muestra Comparativa 5
Materia prima (% en masa)	Composición AOC 1*1	10 10 10	20 20 20	30 40 5	30 40 25	10 5	
		3-1 mm 1-0,2 mm 0,074-0 mm					
	Alúmina sinterizada	20 30 26	10 20 26			20 35 26	30 40 26
		3-1 mm 1-0,2 mm 0,074-0 mm			21	1	
	Al metálico	1	1	1	1	1	1
	Grafito escamoso	3	3	3	3	3	3
	Resina fenólica * 2	+5,0	+5,0	+5,0	+5,0	+5,0	+5,0
Características del material refractario que contiene carbono							
	Contenido de Al ₂ O ₃ C (% en masa)	18,2	36,3	68,1	86,2	13,6	0,0
	Gravedad específica a granel						
	Porosidad aparente (%)	3,04	2,92	2,75	2,7	3,07	3,2
	Expansión térmica (%)	8,8	8,7	8,7	8,6	8,8	7,8
	Índice de corrosión	+0,57	+0,49	+0,36	+0,33	+0,60	+0,66
	Índice de oxidación en fase líquida	88	75	53	41	90	100
	Resistencia al choque térmico (número de ciclos)	3,5	4,5	4,5	4,5	2,5	2
* 1: Composición de oxocarburo de aluminio de la Muestra inventiva 4 en la Tabla 1							
* 2: % en masa con respecto a y además del total del 100 % en masa de otras materias primas							

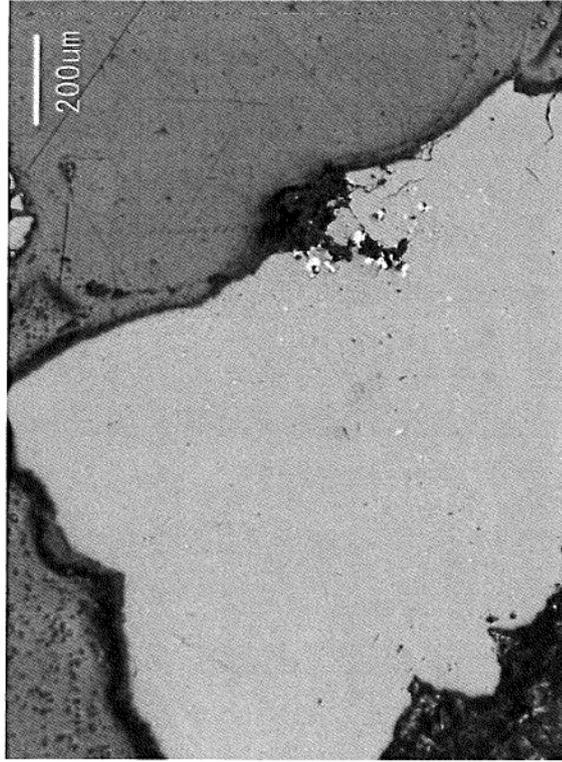
Se mezclaron varias materias primas a las relaciones respectivas ilustradas en la Tabla 3, y se produjeron materiales refractarios que contienen carbono por el mismo método que para las muestras de la Tabla 2. Las características de cada uno de los materiales refractarios que contienen carbono se evaluaron por el mismo método que el de las muestras en la Tabla 2.

- 5 Todas las muestras de la invención fueron superiores a la muestra comparativa 5 en términos de resistencia a la corrosión, resistencia a la oxidación en fase líquida y resistencia al choque térmico.

REIVINDICACIONES

1. Una composición de oxcarburo de aluminio que comprende cristales de Al_4O_4C y cristales de corindón en los que los cristales de Al_4O_4C y los cristales de corindón se encuentran alternativamente en una relación estratificada, en donde los cristales de Al_4O_4C tienen un diámetro promedio de 20 μm o más, basado en la suposición de que un área de sección transversal de cada cristal de Al_4O_4C durante la observación de la composición de oxcarburo de aluminio en una sección transversal arbitraria de los mismos se convierte en un diámetro de un círculo que tiene la misma área que el área de la sección transversal.
2. La composición de oxcarburo de aluminio como se define en la reivindicación 1, que contiene carbono en una cantidad del 3,2 al 6,3 % en masa.
3. Un método para preparar la composición de oxcarburo de aluminio como se define en las reivindicaciones 1 o 2, caracterizado por que comprende someter una materia prima a base de carbono y una materia prima a base de alúmina a fundición en un horno de arco a una temperatura de aproximadamente 1850 a 2400 °C y a continuación enfriar dentro del horno de arco, en el que la velocidad de enfriamiento es igual o inferior a 10 °C/min.
4. El método como se define en la reivindicación 3, en el que uno o más materiales seleccionados del grupo que consiste en carburo de silicio, carburo de boro, nitruro de aluminio, nitruro de boro y un metal se añaden a la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina en una cantidad del 0,2 al 10,0 % en masa con respecto a la cantidad total de la materia prima a base de carbono y la materia prima a base de alúmina, después de lo cual la mezcla obtenida se somete a fusión en el horno de arco y a continuación se enfría dentro del horno de arco.
5. El método como se define en la reivindicación 3, en el que las materias primas se mezclan homogéneamente para permitir que una dispersión en el componente de carbono caiga dentro de $\pm 10\%$; en donde: el término "mezclado homogéneamente" significa un estado en el que la dispersión se reduce significativamente cuando se toma una muestra de la mezcla de la materia prima; y el índice de la mezcla homogénea está representado por la dispersión en el componente de carbono, en donde el término "dispersión en componente de carbono" significa la relación (%) entre la diferencia entre uno específico de la pluralidad de valores de análisis y el valor objetivo preestablecido del componente de carbono, y el valor objetivo preestablecido, en donde la pluralidad de los valores de análisis se obtienen tomando una muestra tres veces de la mezcla de materias primas y analizando los componentes de carbono respectivos de las mezclas muestreadas; el valor de análisis específico tiene la mayor diferencia con el valor objetivo preestablecido; y en donde el término "valor objetivo preestablecido (%)" significa [la relación (%) entre la materia prima a base de carbono y la mezcla de las materias primas] x [la tasa de contenido (%) de componente de carbono en la materia prima a base de carbono], en donde la tasa de contenido (%) del componente de carbono en la materia prima a base de carbono es el valor de medición antes de la mezcla.
6. Un material refractario que contiene, como agregado, la composición de oxcarburo de aluminio como se define en las reivindicaciones 1 o 2.
7. Un material refractario que contiene la composición de oxcarburo de aluminio como se define en las reivindicaciones 1 o 2, en una cantidad del 15 al 95 % en masa.

[FIG2]



[FIG1]

