

## 공침법에 의한 Cordierite 분말의 합성 및 소결에 관한 연구

한문희\* · 박금철

한양대학교 공과대학 무기재료공학과

\*한국동력자원연구소

(1990년 10월 6일 접수)

---

### Synthesis and Sintering of Cordierite by using Coprecipitation Method

Moon-Hee Han\* and Keum-Churl Park

Dept. of Inorganic Materials Eng., Hanyang Univ.

\*Korea Institute of Energy and Resources

(Received October 6, 1990)

#### 요 약

Mg 원으로  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ , Al 원으로  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ , Si 원으로 colloidal silica, 침전제로  $NH_4OH$  를 사용해서 공침법으로 cordierite 전구체 분말의 제조 및 그의 소결에 관한 연구로 얻어진 결과는 다음과 같다.

1)  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  와  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  수용액에 pH 10이 되게  $NH_4OH$  를 가하여 침전을 진행시킨 후, pH 10으로 맞춘 colloidal silica 를 가하는 방법과  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  와  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  수용액에 전체용액을 pH 10으로 변화시킬수 있는  $NH_4OH$  가 가해진 colloidal silica 를 혼합하는 방법 중 후자의 방법에서 균질한 cordierite 전구체 분말을 합성할 수 있었다.

2) 900~1100°C에서 하소한 분말의 성형체의 열간 수축율은 하소온도가 낮은 것일수록 컸으나, 다같이 1200°C 부근에서 수축이 멈추었다.

3) 900°C 및 950°C에서 2시간 하소한 분말의 성형체를 1420°C에서 2시간 상압소결시킴으로서 상대밀도 93~96%, 3점굽힘 강도 81~83 MPa,  $K_{Ic}$  1.9~2.4 MPam<sup>1/2</sup>, 열팽창계수  $0.213-0.732 \times 10^{-6}/^{\circ}C$ 의 소결체가 얻어졌다.

#### ABSTRACT

The cordierite powders were prepared from  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ,  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ , and colloidal silica by the coprecipitation method, and the sintering behavior of the powders were investigated. Two different methods were applied for producing the precursor powders. The one was to add the aqueous solution of  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  and  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  to  $NH_4OH$  to adjust pH at 10 where the colloidal silica of pH 10 was added. The other was to add the aqueous solution of  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  and  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  to the colloidal silica with  $NH_4OH$  to control the final mixture to be at pH 10. It was confirmed that more homogeneous powders were obtained from the latter method. The firing linear shrinkage of the powder compacts fabricated from the calcined powder between 900°C and 1100°C was found to be larger as the calcination temperature was low. But all of them stopped shrinking around

1200°C. The powder compacts, fabricated using the calcined powders at 900°C and 950°C for 2 hours and sintered at 1420°C for 2 hours, showed relative density of 93–96%, 3-point bending strength of 81–83 MPa,  $K_{IC}$  of 1.9–2.4 MPam<sup>1/2</sup> and thermal expansion coefficient of  $0.213-0.732 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ .

1. 서 론

용액반응에 의해 금속 alkoxide 로 부터 합성된 미세한 건조분말은 침전진에 구성성분이 원자단위로 혼합되기 때문에 균질하다<sup>(1,2)</sup> 유리나 결정상태보다 자유에너지 값이 커서<sup>(3)</sup> 저온에서 고밀도 소결체를 얻을 수 있는 등의 특징이 있다. Suzuki 등<sup>(4)</sup>과 필자<sup>(5,6)</sup> 등은 금속 alkoxide 를 이용한 sol-gel 법으로 cordierite 전구체 분말을 합성하고 이를 상압소결하여 고밀도의 소결체를 얻었다. 그러나 금속 alkoxide 로서 가수분해 속도가 다른  $\text{Mg}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2$ ,  $\text{Al}(\text{OC}_3\text{H}_7)_3$ ,  $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ 를 이용하여 sol-gel 법으로 분말을 합성할 경우 반응시간이 많이 소요되고 원료인 금속 alkoxide 등의 가격이 비싸다. Moyer<sup>(7)</sup> 등은 Al 과 Mg 원으로  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  와  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  를,  $\text{SiO}_2$  원으로 colloidal silica 및 sodium silicate 를 사용하고 침전제로 암모니아 가스를 써서 공침법으로 미세하고, 균질한 cordierite 전구체 분말을 합성하여 이를 상압소결함으로써 고밀도의 소결체를 얻고 있다.

본 연구에서는  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  및 colloidal silica 를 사용하고 침전제로  $\text{NH}_4\text{OH}$  를 사용한 공침법으로 cordierite( $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$ ) 미분말을 합성하는 조건과 합성분말의 특성을 구명하고, 나아가서 합성된 분말의 하소 및 소결조건에 따른 소결체의 특성을 추구하였다.

2. 실험 방법

2.1. 출발물질

본 실험에서 cordierite( $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$ )의 Mg 원으로  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Junsei 제 98%) Al 원으로서  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (Junsei 제 98%), Si 원으로서 colloidal silica(Dupont 제 40%)를 사용하였고, 침전제로는  $\text{NH}_4\text{OH}$  용액(Showa chemicals 제 28%)을 사용하였다.

2.2. 공침 혼합물의 제조

본 실험에서 침전은 Fig.1과 같이 두가지 방법을 택하였다. 방법 A에서는  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{SiO}_2$ 의 1mole 농도 colloidal 수용액을 만든 다음

$\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  수용액과  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  수용액을 1:2의 부피비로 섞고 강력히 교반하면서 이 용액의 pH 를 10으로 변화시킬 수 있는 양의 암모니아수를 한꺼번에 가하고 30분간 계속 교반하다가 pH 10으로 조정한 1mole 농도  $\text{SiO}_2$  colloidal 수용액을 1M- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  용액의 2.5배 부피로 가하여 4시간 30분 동안 계속 교반하였다. 또 방법 B에서는 1mole 농도의  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  수용액과  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  수용액을 1:2의 부피로 섞은 다음 1M- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  용액의 2.5배 부피의 1 mole 농도  $\text{SiO}_2$  colloidal 수용액에 총 혼합용액의 pH 를 10이 되게 하는 양의 암모니아수를 가한 것을 Mg, Al 혼합용액에 가하여 5시간 교반하였다. 그리고 이들 침전물은 원심분리기를 이용하여 침강시키고 증류수로 7회 세척한 다음 건조조에 넣어 100°C에서 건조를 행하였다.

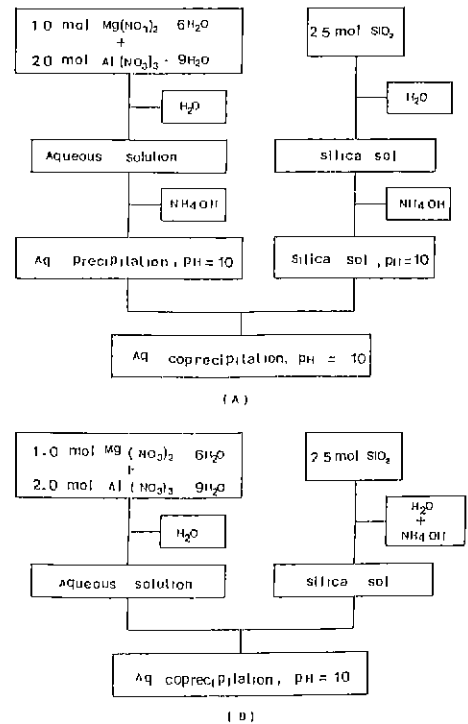


Fig.1. Schematic diagram of aqueous coprecipitation process.

이때 침전물의 화학조성을 알기 위하여 원자흡광분석기(Perkin Elmer 제)를 이용하여 원심분리 후 여액의  $Mg^{2+}$ ,  $Al^{3+}$ ,  $Si^{4+}$ 의 농도를 측정하였다.

2.3. 건조 및 하소 분말의 특성측정

건조된 공침분말의 열화학 변화는 TG/DTA(Rigaku 제, 승온속도  $10^{\circ}C/min$ )에 의한 열분석을 행하였으며 분말의 입자크기와 모양은 TEM(Jeol 제)으로 관찰하였다. 소점온도에서 2시간 하소한 분말의 비표면적 변화는 Surface area analyser(Quanta chrome 제 monosorb)로  $N_2$  가스 흡착법에 의해 측정하였으며, 분말의 일차리 온도에 따른 결정상 확인은 X-선 회절분석기(Rigaku 제)에 의한 X-선 회절분석을 행하였고 화학결합형태를 관찰하기 위해 FT-IR(Nicolet 제)을 이용하여 적외선 분광분석을 행하였다. 또한 소정의 온도에서 2시간씩 하소한 분말을 12MPa의 압력하에서  $5 \times 10 \times 40mm$ 의 크기로 일축 가압성형을 한 다음 150MPa의 압력으로 정수압 성형을 하고 dilatometer(Rigaku 제)로 열간 선수축율을 측정하였다.

2.4. 하소 분말의 소결 및 특성측정

공침법으로 제조한 분말은 건조후 각각  $900^{\circ}C$ ,  $950^{\circ}C$ ,  $1000^{\circ}C$ ,  $1050^{\circ}C$ ,  $1100^{\circ}C$ 에서 2시간 하소하고 polyethylene pot에서 무수 alcohol(James Burrough 제)매질과 알루미늄 ball로 24시간 분쇄 혼합한 다음  $750^{\circ}C$ 의 온도에서 재하소하여 2.3 선수축율 측정용 시편 제작때와 같은 조건으로 성형하였다. 성형시편은 편상 전기 저항로로  $1420^{\circ}C$ 에서 2시간 소성하였으며 가열속도는  $1150^{\circ}C$ 까지는  $200^{\circ}C/hr$ ,  $1150^{\circ}C$  이상에서는  $70^{\circ}C/hr$ 로 하였는데,  $1150^{\circ}C$ 에서는 2시간 유지하였다.

소결시편은 Instron 402로 3점 쥐임강도를 측정하고 Vickers 경도계로  $K_{IC}$ 를 구했으며 SEM(Jeol 제)에 의한 파단면 관찰과 X-선 회절 분석기(Rigaku 제)에 의한 결정상 분석을 하였다. 또한 부피밀도는 증류수를 이용하여 Archimedes 법으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 용액의 침전물

침전반응을 종결시킨 후 용액중의  $Mg^{2+}$ ,  $Al^{3+}$ ,  $Si^{4+}$ 의 분석치로부터 침전물로 변환 ion의 비율은 Table 1과 같다. 여기서 보인 pH가 10일 때 ion의 침전물은  $Si^{4+} \geq Al^{3+} > Mg^{2+}$  순으로 작아지고 있으며, B 방법 때  $Mg^{2+}$ 의

Table 1 Conversion Ratio of Ions from Solution to Precipitate.

Ion	Method	Conversion ratio (%)	
		Method A	Method B
$Mg^{2+}$		98.70	98.83
$Al^{3+}$		99.98	99.98
$Si^{4+}$		99.99	99.99

침전율이 약간 크게 나타나고 있다. 또한 침전물과 공존한 용액중에  $Si^{4+}$ 이 작은 것은 colloidal silica가 미정질의  $Mg(OH)_2$ 와  $Al(OH)_3$ 가 존재하는 용액에서는 거의 100% 흡착되기 때문인데<sup>7)</sup> colloidal silica를 A 방법과 같이 Mg

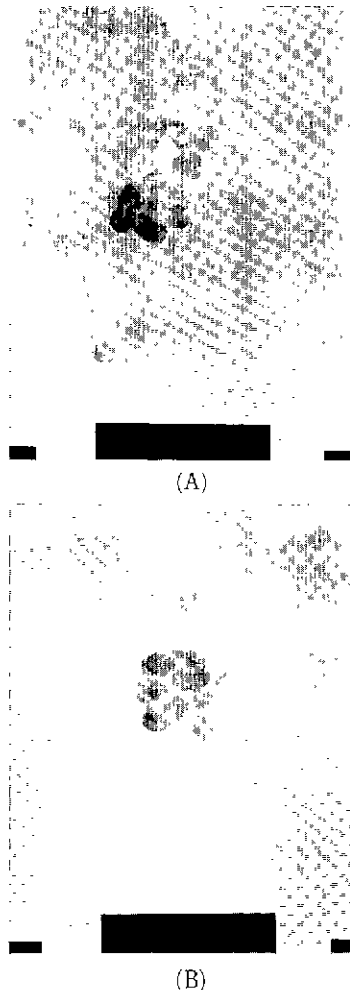


Fig. 2. TEM images of the powders coprecipitated by (A) and (B) methods.

(OH)<sub>2</sub>, Al(OH)<sub>3</sub>가 생성된 후에 가한 것보다 B방법과 같이 Mg(OH)<sub>2</sub>, Al(OH)<sub>3</sub>가 생성되기 시작할 때 가한 것이 다소 Mg<sup>2+</sup>의 침전율을 높이는 효과가 있다고 보인다.

### 3.2. 건조분말의 특성

#### 3.2.1 합성 분말의 형상 및 크기

Fig.1과 같이 Mg<sup>2+</sup>과 Al<sup>3+</sup>을 Mg(OH)<sub>2</sub>와 Al(OH)<sub>3</sub>로 침전시킨 다음 colloidal silica를 가하는 방법 A와 Mg<sup>2+</sup>와 Al<sup>3+</sup>이 colloidal silica가 존재한 상태에서 Mg(OH)<sub>2</sub>, Al(OH)<sub>3</sub>로 침전되게 하는 방법 B로 합성한 cordierite 전구체 분말의 TEM 사진은 Fig.2와 같다. 여기서 다같이 약 50nm 크기의 구형 입자들이 응결되어 있는 상태가 관찰되고 있다. 질소흡착법에 의한 비표면적은 A 방법의 것이 98.015m<sup>2</sup>/g, B 방법의 것이 97.46m<sup>2</sup>/g으로 측정되었다.

#### 3.2.2. 합성분말의 DTA 곡선

합성분말의 DTA 곡선은 Fig.3과 같으며 248°C 근방의 흡열 peak와 1184-1187°C에서 발열 peak가 나타나고 있다. 여기서 흡열 peak는 수산화물의 탈수에 의한 것이며, 발열 peak는 X-선 회절분석 결과로 미루어 spinel의 생성에 따른 것인데 A, B 방법의 차이는 크게 나타나고 있지 않다.

#### 3.2.3. 적외선 분광 분석

100°C에서 건조한 분말의 I.R. Spectra는 Fig.4와 같으며 A 및 B 방법으로 만든 분말 모두 1115cm<sup>-1</sup> 부근의 Si-O-Si 신축진동에 따른 흡수대와 800cm<sup>-1</sup> 부근의 SiO<sub>4</sub> tetrahedra ring 구조에 따른 흡수대가 나타나고 있다<sup>8)</sup>. 또한 680cm<sup>-1</sup>, 540cm<sup>-1</sup> 부근의 M-O(M=Mg, Al) 신축진동에 따른 흡수대<sup>9)</sup>와 460cm<sup>-1</sup> 부근에 Si-O 변각

에 따른 흡수대가 뚜렷이 나타나고 있다. 따라서 1115cm<sup>-1</sup>, 680cm<sup>-1</sup>, 540cm<sup>-1</sup> 부근의 흡수대로 미루어 본 실험에서 얻어진 분말은 Mg-Al 계 spinel형 원자배열을 하고 있으나, 800cm<sup>-1</sup> 부근의 SiO<sub>4</sub> tetrahedra ring 구조

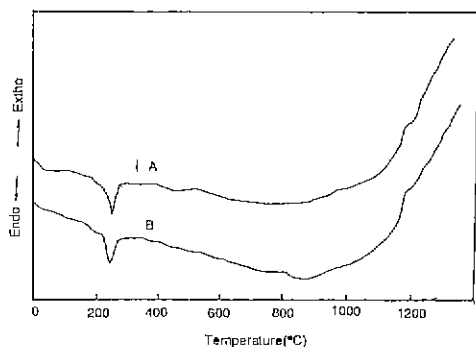


Fig.3. DTA curves of the coprecipitated powders.

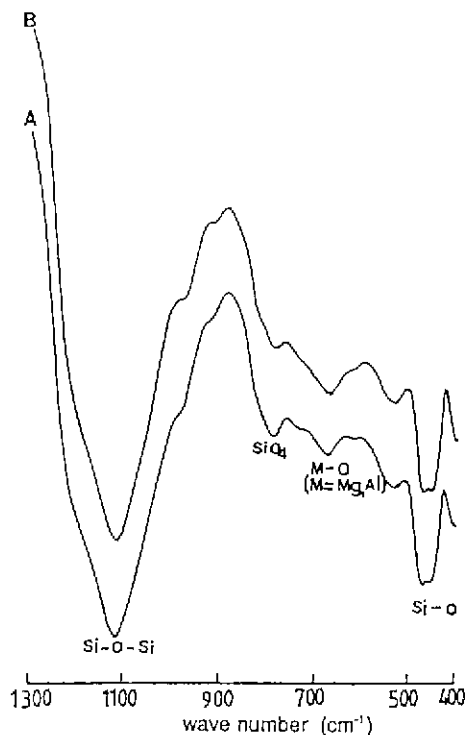


Fig.4 IR spectra of the dried powders.

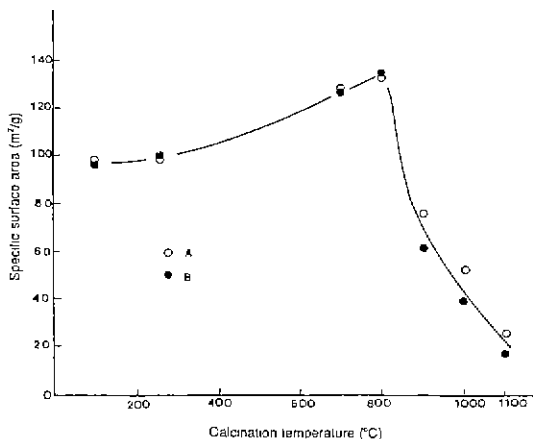


Fig.5. Specific surface area of the powders calcined at different temperatures for 2 hrs.

로 이루어 독립된 colloidal silica도 혼재한 것으로 보여진다.

### 3.3. 하소 분말의 특성

#### 3.3.1. 비표면적 측정

각 온도에서 2시간 하소한 분말의 비표면적 변화는 Fig.5와 같이 하소온도가 800°C 까지는 비표면적이 점차 커지고 있다. 이는 수산화물이 열분해될 때 일어난 부피 변화로 생성된 산화물에는 인장응력이 작용하여 미세한 균일입자로 되기 때문이다<sup>10)</sup>. 그러나 하소온도가 800°C 이상이 되면 비표면적은 급격히 감소되고 있으며 이는 열분해 생성물이 결합이나 응력이 많고 미세하여 비표면적이 크므로 과잉이 물리적 에너지를 갖으므로서<sup>10)</sup> 생성물 입자끼리 약하게 결합되어 2차 입자를 형성하는 한편 다른 종류의 입자와도 약한 결합을 하기 때문이다. 또한 두 종류의 분말의 비표면적은 800°C 까지는 거의 차이가 없으나 800°C 이상에서는 B 방법에 의한 것이 비표면적 감

소율이 약간 크게 나타나고 있는데 이는 A 방법의 것보다 Mg(OH)<sub>2</sub> 생성량이 많아서 입자간의 반응이 빠른 것으로 여겨진다

#### 3.3.2. X-선 회절 특성

하소온도별 분말의 X-선 회절도는 Fig.6과 같다. 1100°C에서의 하소물은 두가지 분말이 다같이 spinel 및 비정질상으로 되어 있고 1200°C 하소물은 비정질, α-cristobalite 및 spinel 상으로 되어 있다. 그리고 1400°C 하소물은 A 방법으로 제조된 것은 α-cordierite, α-cristobalite 및 spinel 상이 나타나고 B 방법의 것은 α-cordierite 상만이 나타나고 있다. 따라서 B 방법에 의해 제조된 분말이 보다 cordierite 조성에 가깝고 구성성분이 균일하게 분포된 것을 알 수 있다.

#### 3.3.3. 열간 선 수축률

저온에서 cordierite가 생성되는 B 방법에 의해 제조한 분말로 된 시편의 하소온도별 열간 선 수축율은 Fig.7과 같다.

여기서 보면 시편의 열간 선 수축율은 하소온도가 높아짐에 따라 감소되고 있으며 각 시편은 그 하소온도와 1200°C 근방까지에서 수축이 일어나고, 1200~1300°C에서는 약간 팽창하는 현상을 나타내고 있다. 따라서 1200°C 부근에서 거의 치밀화가 완결되는데 이는 하소온도가 높은 것일수록 Fig.5와 같이 고상반응과 소결이 진행되어 입자는 부피가 안정된 상태여서 열간 수축율은 낮아져 있다고 할 수 있다.

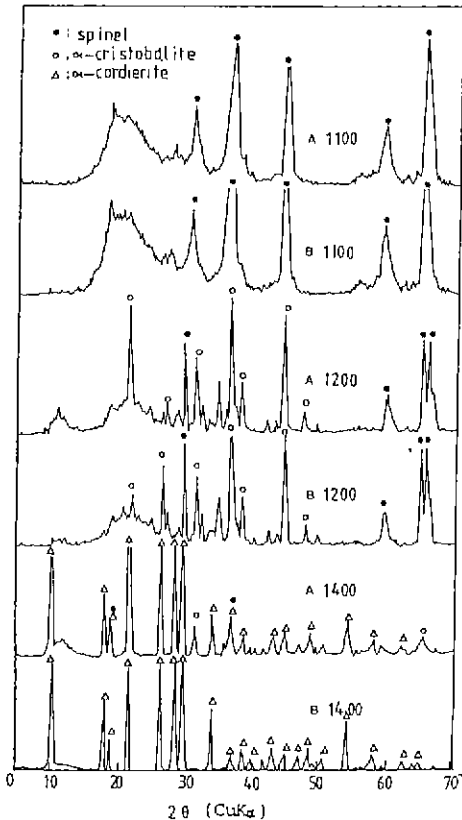


Fig.6. XRD patterns of the calcined powders

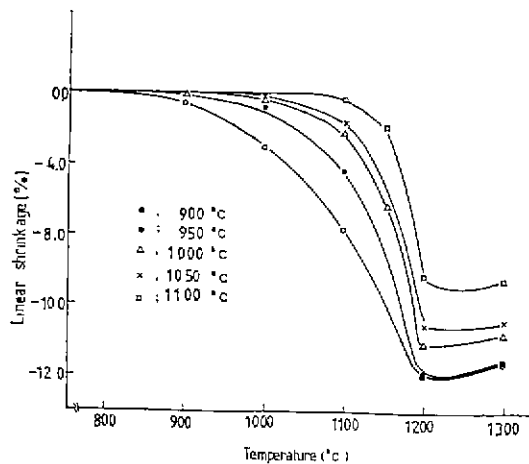


Fig.7. Linear shrinkage of the compacts of powders calcined at different temperatures.

3.3.4. 적외선 분광 분석

B 방법에 의해서 제조된 분말을 900°C, 950°C, 1000°C, 1050°C에서 각각 2시간씩 하소한 것의 I.R. Spectra는 Fig. 8과 같으며 하소온도에 관계없이 1100cm<sup>-1</sup> 부근에서 Si-O-Si 신축진동에 따른 흡수대와 800cm<sup>-1</sup> 부근의

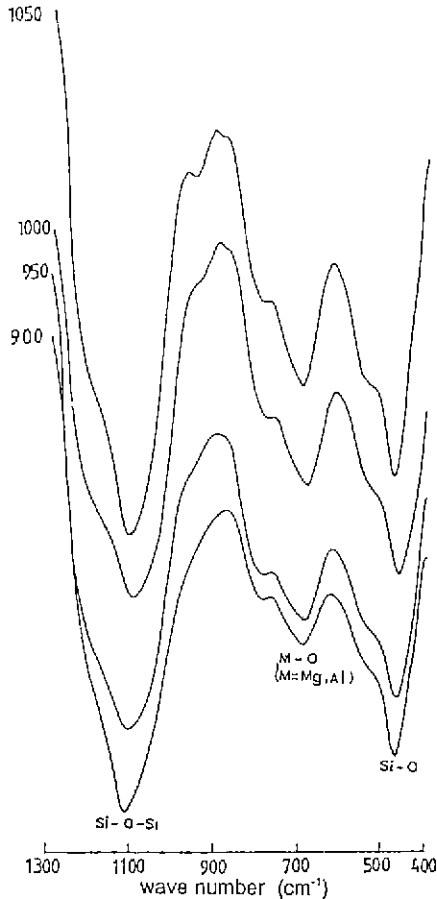


Fig. 8. IR spectra of the calcined powders.

SiO<sub>4</sub> tetrahedra ring 구조에 따른 흡수대가 나타나고 있다. 또한 690cm<sup>-1</sup> 부근에서 Mg-O(M=Mg, Al) 신축진동에 의한 흡수대와 470cm<sup>-1</sup> 부근에서 Si-O 변각에 따른 흡수대가 뚜렷이 보이고 있다. 따라서 제조된 분말은 1050°C로 히소될 때까지 Mg-Al 계 spinel과 유리 실리카가 혼합된 원자배열을 하고 있음을 알 수 있다.

3.4. 소결체의 특성

B 방법에 의해 제조된 분말을 900°C, 950°C, 1000°C, 1050°C, 1100°C에서 2시간 하소한 분말의 성형체를 1150°C에서 2시간 유지시켜 1420°C에서 2시간 소성한 소결체의 X-선 회절분석 결과는 다같이 α-cordierite만의 특성을 나타냈으며 소결체의 물리적 특성은 Table 2와 같다. Table 2의 물리적 특성 측정 결과들을 보면 시편의 상대 밀도는 87-96%, 3점 꺾임강도는 68-83MPa, K<sub>IC</sub>값은 1.11-2.38MPa<sup>1/2</sup>로 측정되었는데 밀도와 꺾임강도는 950°C 이상으로 하소한 것은 하소온도가 높을수록 작은 값을 나타내고 있으나 900°C에서 하소한 것은 950°C에서 하소한 것보다 작은 값을 나타내고 있다. 이와같은 사실은 시편 파단면의 SEM 사진 Fig. 9에서와 같이 상대밀도가 작은 것이 입계에 많은 잔류기공을 갖은 까닭이며, 하소온도가 1000°C 이상으로 너무 높으면 입자의 비표면적이 작아지고 활성이 작아서 소결속도가 낮아지기 때문이다. 열팽창계수는 0.213-1.24×10<sup>-6</sup>/°C로 비교적 작은 값으로 측정되었다.

4. 결 론

Mg 원으로 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6H<sub>2</sub>O, Al 원으로 Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9H<sub>2</sub>O, Si 원으로 colloidal silica, 침전제로 NH<sub>4</sub>OH를 사용해서 공침법으로 cordierite 전구체 분말의 제조 및 그 소결에 관한 연구로 얻어진 결과는 다음과 같다.

Table 2 Properties of the Powder Compacts Sintered at 1420°C for 2 hrs with Different Calcination Temperatures.

Calcination Temp. (°C)	Bulk density (g/m <sup>3</sup> )	Relative density (%)	M.O.R (MPa)	K <sub>IC</sub> (MPa <sup>1/2</sup> )	C.T.E(×10 <sup>-6</sup> /°C, 25-900°C)
900	2.331	92.80	81.0	1.90	0.732
950	2.417	96.22	82.5	2.38	0.213
1000	2.298	91.48	79.5	1.76	0.58
1050	2.201	87.62	72.0	1.55	0.857
1100	2.190	87.18	67.5	1.11	1.24

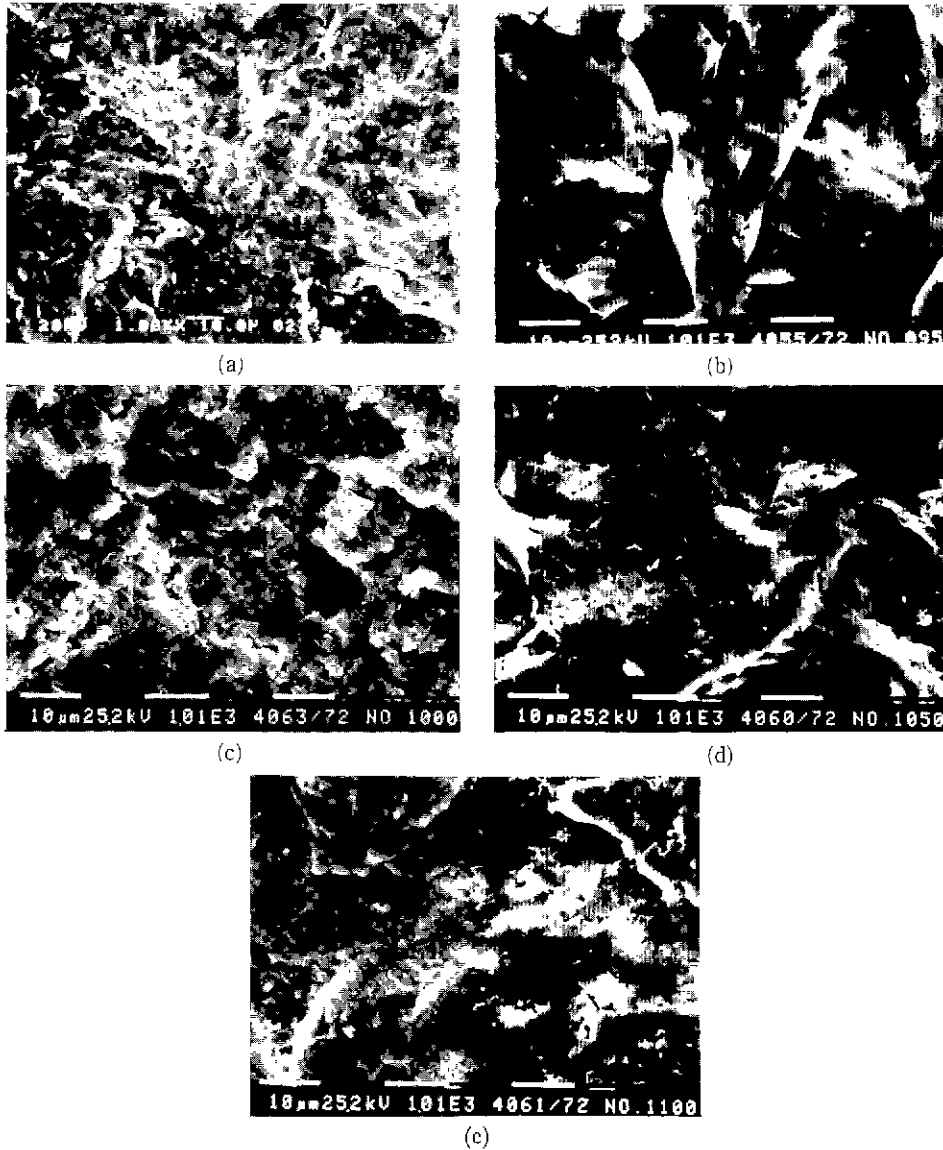


Fig.9. SEM images of the fractured surfaces of the powder compacts sintered at 1420°C for 2hrs with calcination temperatures

(a) 900°C-2hrs, (b) 950°C-2hrs, (c) 1000°C-2hrs, (d) 1050°C-2hrs, (e) 1100°C-2hrs

1)  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  와  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  수용액에 pH 10이 되게  $NH_4OH$  를 가하여 침전을 진행시킨 후, pH 10으로 맞추는 colloidal silica 를 가하는 방법과  $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  와  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  수용액에 전해용액을 pH 10으로 변화시킬 수 있는  $NH_4OH$  가 가해진 colloidal silica 를 혼합하는 방법 중 후자의 방법에서 균

질한 cordierite 건구체 분말을 합성할 수 있었다.

2) 공침법으로 합성한 분말을 각 온도에서 2시간씩 하소하면 그 비표면적은 800°C 까지는 증가하다가 800-900°C 사이에서는 급격히 감소하였다.

3) 900-1100°C에서 2시간 하소한 분말의 성형체의 일간 수축율은 하소온도가 낮은 것일수록 컸으나, 다같이

1200°C 부근에서 수축이 멈추었다.

4) 900°C 및 950°C에서 2시간 하소한 분말의 성형체를 1420°C에서 2시간 삼압 소결시킴으로써 상대밀도 93-96%, 3점 쥘임강도 81-83 MPa,  $K_{IC}$  1.9-2.4 MPam<sup>1/2</sup>, 열팽창계수  $0.213-0.732 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 의 소결체가 얻어졌다.

### 「감사의 글」

이 연구는 1989년도 문교부 첨단공학(신소재 분야) 학술연구조성비에 의해서 수행되었으므로 감사드립니다.

### REFERENCES

1. J.R. Moyer, A.R. Prunier, J.R., N.N. Huges and Winterzon, "Synthesis of Oxide Ceramic Powders by Aqueous Coprecipitation," Better Ceramic Through Chemistry II, p.117-122, Materials Research Society, Pittsburgh (1986).
2. H. Suzuki, K. Ota and H. Saito, "Preparation of Cordierite Ceramics from Metal Alkoxides(part 1)," *J. Ceram. Soc., Japan*, **95** (2) 163-169 (1987).
3. R. Roy, "Gel Route to Homogenous Glass Preparation," *J. Am. Ceram. Soc.*, Discussion and Notes, **52**, 344 (1969).
4. H. Suzuki, K. Ota and H. Sato, "Preparation of Cordierite Ceramics from Metal Alkoxides(part 2)," *J. Ceram. Soc., Japan*, **95** (2) 170-175 (1987).
5. 박금철, 한문회, "금속 Alkoxide로 부터 Cordierite 분말의 합성 및 소결에 관한 연구(I)," *요업학회지*, **27** (5) 625-630 (1990).
6. 박금철, 한문회, "금속 Alkoxide로 부터 Cordierite 분말의 합성 및 소결에 관한 연구(II)," *요업학회지*, **27** (6) 777-782 (1990).
7. Ralph K. Iler, "The Chemistry of Silica," p.78-79, Johns Wiley and Sons (1978).
8. M. Decottignies, J. Phalippou and J. Zarzycki, "Synthesis of Glasses by Hot Pressing of Gels," *J. Mater. Sci.*, **13**, 2605-2618 (1978).
9. M. Sugiura and O. Kamigaito, "Characterization and Formation Process of Spinel(MgAl<sub>2</sub>(iOC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>)<sub>8</sub>) Method," *J. Ceram. Soc., Japan*, **92**, 605-611 (1984).
10. 澤田 豊, 植松敬三, 水谷惟恭, "セラミックス の 製造 プロセス 固體の 熱分解," *セラミックス*, **16** (12) 1034-1039 (1981).