

알루미나-활석계에서 알루미나의 입자 크기가 테이프 케스팅 및 소결 거동에 미치는 영향

윤원균 · 김호양 · 이정아 · 김정주

경북대학교 무기재료공학과
(1997년 9월 6일 접수)

Effects of Particle Size of Alumina on the Behaviors of Tape Casting and Sintering of Alumina-Talc System

Won-Gyun Yoon, Ho-Yang Kim, Jung-A Lee and Jeong-Joo Kim

Dept. of Inorg. Mater. Eng., Kyungpook Nat. Univ.

(Received September 6, 1997)

요 약

알루미나-활석계 액상소결 요업체의 테이프 케스팅시 알루미나 분체의 크기 및 활석 첨가량에 따른 슬러리의 유변학적 거동 및 치밀화 거동을 조사하였다. 알루미나의 입자 크기가 작을수록, 활석 첨가량이 증가할수록 슬러리의 의가소성 거동은 심화되었다. 조대한 알루미나를 사용하는 경우 활석 첨가량을 증가시키거나 소결 온도를 높이면 치밀화가 촉진되었다. 반면 미세한 알루미나를 사용하면 액상 생성 이전에 알루미나 기지부의 치밀화가 이루어져 입자 재배열이 어려워지기 때문에 소결 온도가 높거나 활석 첨가량을 증가시키는 경우 치밀화가 억제되었다.

ABSTRACT

Effects of particle size of alumina and amount of talc on tape casting and densification behaviors of alumina-talc system were investigated. The pseudoplastic behaviors of slurries increased with increase in amount of talc addition and decrease in alumina particle size. In case of using coarse alumina powder, densification of specimens were accelerated with increase of sintering temperature and amount of talc addition. On the contrary, fine alumina powder retarded of rearrangement of alumina particle during liquid phase sintering due to premature densification of alumina matrix region before formation of liquid phase and then densification of specimens were suppressed with increase of sintering temperature and amount of talc addition.

Key words : Alumina, Talc, Particle size, Tape casting, Liquid phase sintering

1. 서 론

알루미나는 요업 재료 중 가장 오랫동안 그리고 폭넓게 사용되어온 재료의 하나로서, 테이프 케스팅을 이용하여 세라믹 기판을 제조하는 경우 다양한 전자 부품들의 기판 용으로 많이 응용되고 있다. 이와 같은 기판용 재료로써 산업적 적용이 성공적으로 이루어진 것은 알루미나의 소결 기구에 대하여 폭넓은 연구가 있어왔던 것 이외에도 슬러리 제조시 유기 용매 및 결합제 등의 첨가에 따른 유변학적 거동, 성형 후의 건조 거동 그리고 생산 장비의 개선 등 지금까지의 포괄적인 연구에 기인된다고 할 수 있다.¹⁾

한편 알루미나 기판 제조의 경우 상대적으로 낮은 온도에서 소결하기 위해 소결성이 좋은 미세한 원료 분체

를 사용하거나 저융점의 소결 조제를 첨가하여 소결 도중 액상소결을 유발시키게 된다. 소결 조제는 대부분 고온에서 저융점을 형성하는 $\text{CaO-MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계가 되는데 실제 알루미나 분체에 첨가할 때는 anorthite, talc, kaolinite 그리고 glass 등의 원료를 단독으로 혹은 서로 혼합하여 사용하기도 한다.^{2,3)} 이들은 모두 소결 조제의 융점에 관심을 두고 소결시 소결 조제가 용해하는 경우 입자 재배열 및 용해-재석출이 이루어져 쉽게 치밀화가 이루어지는 것으로 이해하였다. 그 외 Kwon⁵⁾ 등은 알루미나 액상소결시 알루미나의 입자가 작을수록 소결 구동력을 높여 치밀화 속도가 증가됨을 보이며 이중 용해-재석출 과정의 촉진으로 설명하였다.

그런데 일반적으로 액상소결은 고상 입자 재배열, 용

해-재석출 그리고 고상 골격 구조 형성의 3단계로 구분할 수 있는데 고상 입자 재배열 단계가 치밀화 속도가 가장 빠르며 대부분의 치밀화는 이때 유발되는 것으로 알려져 있다.^{6,7)} 특히 이러한 고상 입자 재배열 단계는 두 단계로 세분되는데 그 중에서 1차 고상 입자 재배열은 생성된 액상의 모세관 힘에 의해 고상의 입자가 충전되는 단계로 고려된다.⁸⁾ 그런데 2차 고상 입자 재배열은 고상 입자가 강한 응집체를 형성하고 있는 경우 액상이 응집체 내부의 입계를 따라 침투하여 입자를 분리하면서 입자 재배열이 일어나는 단계로 1차 고상 입자 재배열에 비하여 치밀화 속도가 상대적으로 낮아진다.^{2,3,8,9)} 이 중에서 2차 고상 입자의 재배열 단계는 입자들이 강한 응집을 이루고 있는 경우이거나 특히 액상 생성 이전에 상당한 치밀화가 이루어진 경우에는 액상 생성만으로 치밀화가 바로 이루어지기는 어려울 것으로 추정된다.

결국 액상소결에 있어서도 소결 구동력을 높이기 위해 미분체를 사용하는 것이 유리할 수 있지만 액상 생성 이전에 고상 입자간 치밀화가 너무 진행하게 되면 액상 생성시 고상 입자의 재배열을 효과적으로 기대할 수 없게 되고 재배열 단계 중 상대적으로 속도가 늦은 2차 고상 입자 재배열 단계가 대부분을 차지하게 되어 오히려 치밀화 속도가 저하될 수 있다.

본 실험에서는 알루미늄에 액상소결조제로 활석을 첨가하는 경우 소결 온도 및 활석 첨가량에 따른 치밀화 거동을 조사하였다. 이때 알루미늄 입자의 크기를 변화시켜 액상 생성 이전에 치밀화 정도를 제어하였다. 아울러 본 실험에서의 시편 제조는 닥터 블레이드를 이용한 테이프 캐스팅 방법으로 행함으로써 알루미늄 입자 크기 및 활석 첨가량에 따른 유연학적 거동과 이에 따른 그린 시트의 특성도 동시에 조사하였다.

2. 실험방법

본 실험에서 사용된 상용의 저소다 알루미늄 분체로

SUMITOMO사의 AM21과 AES11 분체였으며 제조사가 제시한 평균입경이 각각 3.58 μm , 0.42 μm 이었다. 또한 알루미늄 소결시 소결조제로 사용된 활석은 純正化學(주)의 시약급으로 하였다. 용매는 톨루엔, 에탄올, n-부틸알콜 혼합 유기 용매를 무게비가 6:2:2로 혼합한 azeotropic 조성으로 하였다. 분산제는 산노코프(주)의 SN-9228을 사용하였으며 입자 크기 및 활석 첨가량에 따라 첨가량을 변화시켰다 그 외 결합제와 가소제는 Monsanto사의 B98과 DBP(dibutyl phthalate)를 사용하였으며 이들은 각각 2:1의 무게비로 혼합하여 사용하였다.

Table 1에 슬러리의 매합 조성을 나타내었다. 여기에서 각 성분은 알루미늄 분체 100 g에 대하여 첨가된 무게를 의미한다.

제조 공정은 일반적인 테이프 캐스팅 공정을 따랐으며 먼저 무기 원료와 혼합 용매를 분산제와 함께 24시간 1차 밀링하여 분산제가 분체 표면에 흡착되게 하였다. 여기에 다시 결합제와 가소제를 혼합하여 24시간 2차 밀링을 행하였다. 출토된 슬러리는 감압하에서 탈포(degassing)를 행하여 슬러리 중의 기포 및 과량의 용매를 제거하여 성형에 적절한 7~12 Pa·s 정도의 점도를 갖게 하였다.

성형시 닥터 블레이드의 필름 이동 속도와 블레이드의 높이를 조절하여 전단 속도가 15/s정도가 되게 조절하였다. 시트는 급격한 건조에 따른 건조 균열을 막기 위해 밀폐된 상태에서 건조 속도를 제어하였다.¹⁰⁾ 결합제 및 가소제의 소각을 위해 2°C/min의 승온속도로 500°C까지 승온한 후 6시간 동안 유지하였다. 소결은 공기 중에서 1450°C, 1550°C 그리고 1650°C에서 온도별로 행하였으며 소결 시간은 모두 2시간으로 고정하였다. 각각의 경우 승온속도는 5°C/min 그리고 로냉하였다.

분체의 입도분석은 입도분석기(Shimadzu, SA-CP3)로 행하였으며 증류수에 sodium hexameta phosphate ((NaPO₃)₆)를 0.2 wt% 섞은 분산액을 이용하여 알루미늄 분체를 잘 분산시킨 후 측정하였다. BET(micromeritics,

Table 1. Batch Formulations of Slurries for Doctor Blade

Constituent		AES11-T1%	AES11-T3%	AES11-T5%	AM21-T1%	AM21-T3%	AM21-T5%
Powder	Alumina	99	97	95	99	97	95
	Talc	1	3	5	1	3	5
Solvent	Toluene	27			27		
	Ethanol	9			9		
	n-butyl alcohol	9			9		
Dispersant	SN9228	1.21	1.24	1.27	0.62	0.66	0.67
Binder	PVB	6			6		
Plasticizer	DBP	3			3		

ASAP 2010)를 이용한 분체의 표면적 측정도 동시에 행하였다. 유변학적인 거동은 점도계(Haake, VT500)를 사용하여 조사하였으며 특히 분산제의 최적량 결정에 있어서는 일정한 전단 변형률에서 분산제량을 변화시킬 때 점도가 가장 낮은 점으로 정하였다. 그 외 시트의 수축률을 버니어캘리퍼스(Mitsutoyo, CD-20)를 사용하여 측정하였고 밀도는 시트의 크기와 무게로 계산하였다. 시트의 파단면의 미세구조는 주사전자현미경(SEM: JEOL, JSM-5400)을 이용하여 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 본 실험에서 사용한 AES11, AM21 알루미

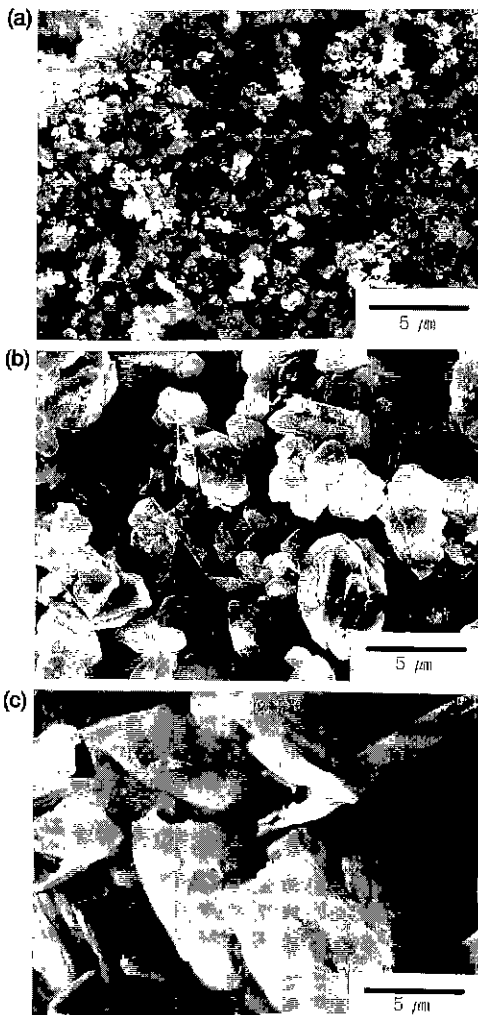


Fig. 1. Microstructures of used (a) AES11, (b) AM21 and (c) talc powders.

나 및 활석 분체의 주사전자현미경사진이다. Fig. 1의 (a)에는 AES11 알루미나 분체를 나타내었는데 침강법으로 측정된 분체의 평균입경은 0.42 μm, 그리고 BET로 측정된 비표면적이 7.0 m²/g으로 나타났다. (b)에는 AM21 알루미나 분체를 나타내었는데 평균입경이 3.58 μm 그리고 비표면적이 1.2 m²/g으로 나타나 이들간의 입자 크기는 8배 이상, 그리고 비표면적은 6배 정도 차이가 나는 것으로 평가되었다. 그 외 입자의 형태나 분산 정도는 서로 유사하였다. 한편 (c)에는 활석 분체를 나타내었는데 입자 모양은 불규칙하지만 모두 판상의 형태를 가지고 있으며, 침강법으로 측정된 평균입경은 7.86 μm, 비표면적은 5.85 m²/g으로 나타났다.

Fig. 2의 (a), (b), (c)는 각각 AES11, AM21 그리고 활석 분체에 대하여 분산제량에 따른 슬러리의 점도 변화를 나타낸 것이다. 전단 속도는 15/s로 하였다. AES

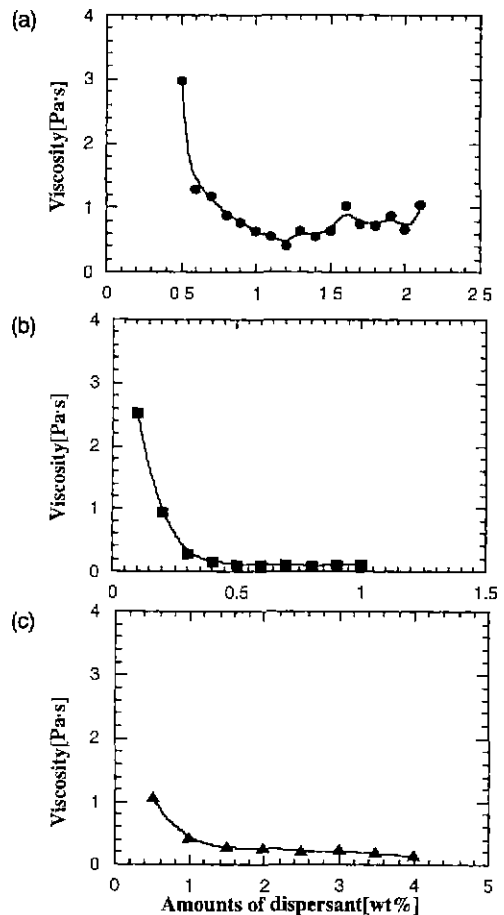


Fig. 2. Variations of viscosity in (a) AES11, (b) AM21 and (c) talc powders with an addition of dispersants. Shear rate is 15/s.

11 슬러리의 경우는 분산제량이 1.2 wt%일 때, AM 21의 경우에는 0.6 wt%일 때 그리고 활석의 경우는 2.5 wt%일 때 가장 낮은 점도를 나타내었다. 또한 비표면적의 비와 정확히 일치하지는 않았지만 비표면적이 큰 AES11 분체가 AM21 분체보다 많은 분산제를 요구함을 알 수 있다. 이에 따라 이들 분체에 활석을 첨가하는 경우의 최적 분산제량은 지렛대 법칙을 이용하여 Table 1에 나타낸 바와 같이 정하였다. 그 외 AES11의 슬러리의 경우 AM21보다 전반적으로 높은 점도를 나타내었는데 이는 슬러리 내 단위부피당 입자 수가 많은 AES11의 경우 입자끼리의 충돌 횟수가 증가하여 입자와 입자간의 영향이 증가되었기 때문이다.¹¹⁻¹³⁾ 즉 이러한 입자와 입자간의 인력은 슬러리 내에서 응집(flocs)을 형성하게 되는데 이 경우 용매의 일부가 응집체에 포획되기 때문에 유효고형분율이 증가하게 된다.

Fig. 3은 Table 1에 제시된 조성으로 슬러리를 제조한 경우 2차 밀링 및 탈포 공정 후의 각각 슬러리의 전단 속도에 대한 점도 변화를 나타낸 것인데 (a)는 미세한 알루미늄 그리고 (b)는 조대한 분체를 각각 사용한 것이

다. 2차 밀링만 행한 슬러리의 경우 전단 속도가 20/s이상에서는 2~5 Pa s범위의 점도를 가졌으며, 여기에 탈포 공정을 행하게 되면 용매의 휘발에 따라 점도는 7~12 Pa s범위로 증가되었다. 또한 알루미늄 입자의 크기가 미세할수록, 활석 첨가량이 증가할수록, 탈포 공정 전후의 모든 슬러리에서 의가소성 거동(pseudoplastic behavior)이 심화되는 경향으로 나타났다. 이러한 의가소성 거동의 심화는 전단 속도가 낮을 경우에는 슬러리 내의 분체들이 용매가 포획된 응집체(flocs)를 보다 쉽게 형성하여 유효고형분율을 증가시키는 것을 의미한다. 또한 전단 속도를 증가시킬 때는 이들 응집체의 파괴로 응집체가 함유하고 있던 용매를 슬러리로 내어 놓기 때문에 유효고형분율을 증가되어 슬러리 점도는 다시 감소하게 된다. 알루미늄 입자 크기가 미세할수록 탈포 공정 후 의가소성 현상이 심화되는 것은 고상 입자 미세화 및 용매 휘발에 따른 슬러리 내 고상 성분의 분율이 증가에 따라 분체간 충돌 횟수 증가로 보다 용이하게 응집체가 형성되기 때문으로 추정하였다.¹⁴⁾ 다음으로 활석 첨가량이 증가함에 따라 의가소성 거동이 심화되었는데 활석의 경우 알루미늄 분체에 비하여 상대적으로 비표면적이 크고 그 형태 또한 판상의 구조를 갖고 있는 바 전단 속도에 따른 배향성의 변화 등에 따라 활석과 알루미늄의 충돌 횟수 및 부착 정도가 증가하였기 때문으로 추측하고 있지만 현재 그 이유를 정확하게 알 수는 없다.

Fig. 4에는 각각의 알루미늄 분체에 활석을 5 wt% 첨

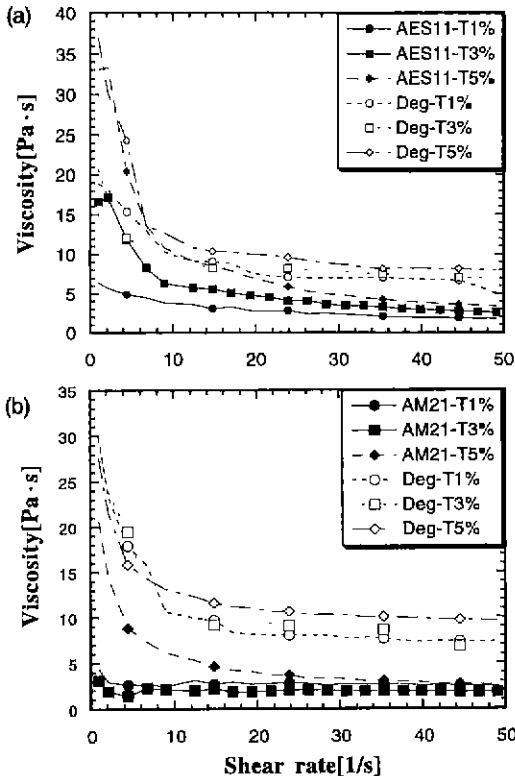


Fig. 3. Variations of viscosity as a function of shear rate in the slurry (a) AES11-talc and (b) AM 21-talc system after milling and degassing.

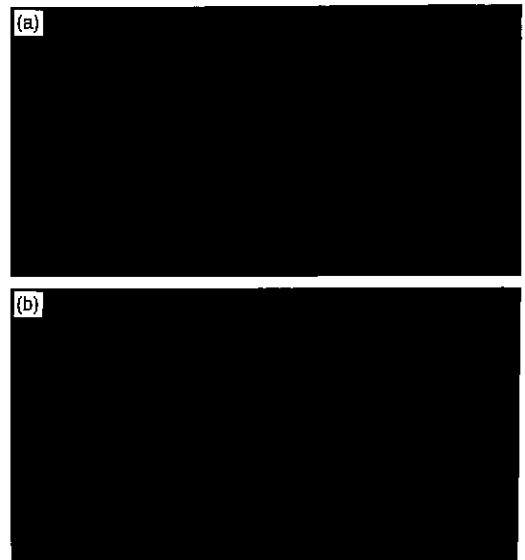


Fig. 4 Photographs of green sheet (a) AES11-5 wt% talc and (b) AM21-5 wt% talc.

가한 슬러리를 성형한 그린 시트의 사진을 나타내었다. 이때 필름의 이동 속도는 70 cm/min, 블레이드 높이는 1.4 mm였으며 그린 시트의 두께는 알루미나 분체의 입자 크기에 관계없이 0.7 mm를 나타내었다. (a)에는 AES11 분체 즉, 미세한 분체를 사용한 그린 시트를 나타내었는데 건조 균열이 심하게 나타나 있음을 알 수 있다. 반면 (b)에 나타낸 AM21 분체 즉, 조대한 분체를 사용한 경우에는 건조 균열이 없는 균일한 그린 시트를 제작할 수 있었다. 사진으로 나타내지는 않았지만 활석 첨가량이 1 wt% 및 3 wt% 첨가한 경우도 동일한 거동을 나타내었으며 활석 첨가량이 증가할수록 미세한 분체를 사용하여 의기소성 거동이 심한 건조 균열이 심해졌다. 이 또한 슬러리 내에 보다 많은 응집체(flocs) 생성에 따라 포획된 용매량이 많고 이에 따라 건조시 건조 수축률이 상대적으로 커지기 때문으로 이해되었다.

Fig. 5는 각각의 슬러리를 이용해 그린 시트를 제조할 때 활석 함량에 따른 그린 시트의 밀도를 나타낸 것이다. 알루미나 입자 크기에 관계없이 활석 함량에 따라 그린 시트의 밀도는 저하되었다. 이러한 밀도 저하는 두 가지로 해석되어질 수 있다. 첫째 활석의 밀도가 2.75 g/cm³로 알루미나의 3.98 g/cm³에 비하여 상대적으로 낮아 저밀도의 활석 함량이 증가할수록 시트의 밀도는 저하할 수 있다. 다음으로는 슬러리 제조시 활석의 첨가량이 증가하면 Fig. 3에서 나타난 바와 같이 의기소성 거동이 심화되기 때문으로 추정된다. 이러한 의기소성의 심화는 전단 속도를 0으로 하는 경우 시트 내부에 형성되는 응집체가 상대적으로 많은 양의 용매를 포획하는 것의 의미이며 이에 따라 활석량의 증가에 따라 응집체의 저밀도화가 촉진되어 그린 시트의 밀도를 낮출 수 있다.

Fig. 6은 활석 함량에 따른 소결 후 시트의 겉보기 밀도를 나타내었다. 소결 온도는 1450°C, 1550°C 그리고

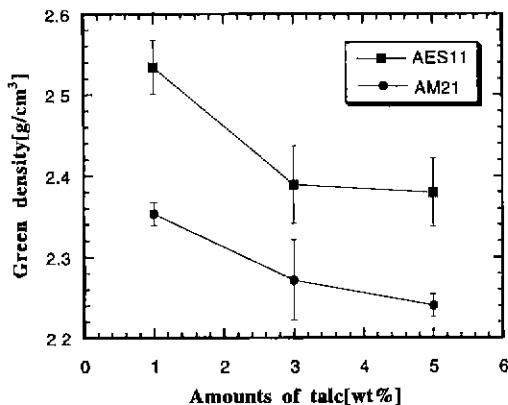


Fig. 5. Variations of green density with an addition of talc.

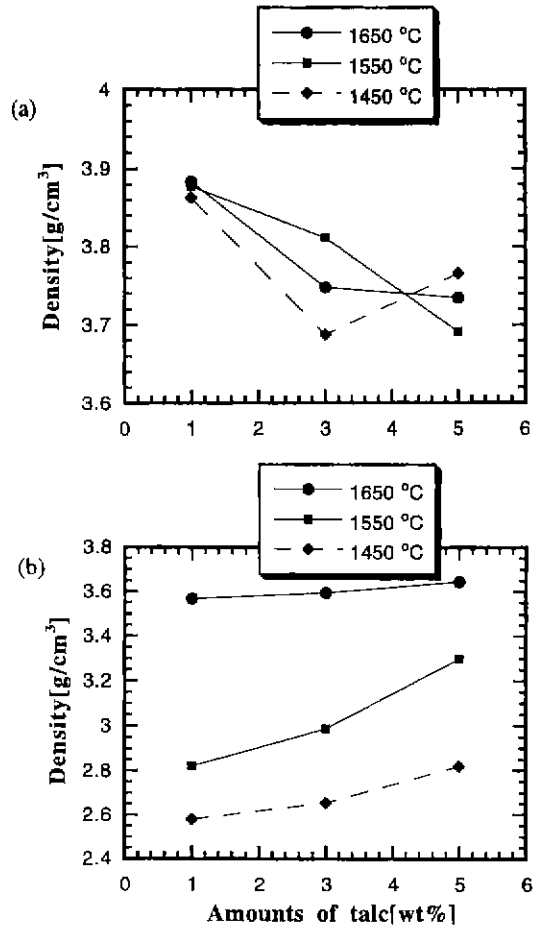


Fig. 6. Variations of density in sintered specimens of (a) AES11 and (b) AM21 with an addition of talc.

1650°C였고 소결 시간은 모두 2시간이었다. 일반적으로 알루미나-활석계에서의 액상 생성 온도는 1350°C~1400°C 부근인 것으로 보고되고 있다.⁴¹⁵⁾ Fig. 6의 (b)에서 보듯이 AM21 알루미나 즉, 조대한 분체를 사용하는 경우 활석 함량을 증가시키거나 소결 온도를 높이면 소결 밀도가 증가되고 있다. 이는 알루미나에 첨가된 활석이 소결 도중 액상을 형성하여 액상소결을 유발하였기 때문으로 쉽게 설명할 수 있다. 즉 알루미나에 저밀도의 활석량이 증가하게 되면 겉보기 밀도는 감소하여야 함에도 오히려 밀도가 증가하는 것은 기공량의 저하 즉 치밀화가 우선하였기 때문으로 설명할 수 있다.

그런데 Fig. 6의 (a)에는 미세한 AES11 알루미나 분체를 사용한 경우를 나타내었는데 활석 함량이 증가하게 되면 밀도가 오히려 저하되는 것으로 나타났다. 미세한 알루미나를 사용했을 경우 활석 첨가량에 따른 소결

밀도 저하는 저밀도의 활석 첨가에 의한 결보기 밀도 저하 이외에도 액상이 생성되더라도 기공 제거 즉 치밀화가 상대적으로 억제되었기 때문일 수도 있다. 즉 본 실험에서 사용된 AES11과 같이 미세한 분체의 경우 상대적으로 낮은 온도에서도 치밀화가 진행되어 알루미늄 입자간에 견고한 골격 구조가 이루어질 수 있고 이에 따라 액상이 생성되더라도 입자간 재배열이 어렵게 되어 입자 재배열에 의한 치밀화는 기대할 수 없게 된다. 한편 활석량이 5 wt%일 때 1450°C에서 소결하는 경우가 가장 밀도가 높고 1550°C에서는 급격한 밀도 저하를 나타내다가 다시 1650°C에서 치밀화가 진행되는 것을 알 수 있다. 이와 다른 활석 함량에서도 소결 온도와 치밀화 정도가 일치하지 않음을 알 수 있다. 이는 실제 활석이 승온 도중 미분체의 알루미늄과 반응하여 다양한 상석출 및 액상 생성이 가능한데 이러한 반응에 따른 치밀화 거동도 동시에 나타난 것으로 추정되지만 현재로서는 정확한 이유를 알 수 없다.

Fig. 7에는 AES11 알루미늄 분체에 활석을 5 wt% 첨가하여 1450°C, 1550°C 그리고 1650°C에서 각각 2시간 소결한 시편의 파단면을 나타내었다. 한편 사진으로 나타내지는 않았지만 활석량이 1 및 3 wt% 첨가한 경우도 이와 유사한 거동을 나타내었다. (a)에 나타난 사진은 1450°C에서 소결한 시편으로 판상 형태의 기공이 평행한 형태로 배열되어 있음을 알 수 있다. 이때 기공은 판상 형태의 활석이 소결 온도 증가에 따라 액상을 형성하고, 형성된 액상이 모세관 힘에 의해 알루미늄 입자 사이로 빠져나가 형성된 것으로 추정되며 특히 이러한 기공의 배열은 판상의 활석이 테이프 캐스팅 시트면과 평행하게 배열되었기 때문으로 믿어진다.¹⁾ 한편 기공 주위의 기지상들은 이미 상당한 치밀화를 이룬 것으로 보아 액상 형성과 동시에 고상 입자의 재배열은 기대하기 곤란할 것으로 추정된다. (b)에는 1550°C에서 소결한 시편의 파단면 사진으로 1450°C에서 소결된 시편과는 달리 기공 형태가 다소 팽창한 것으로 나타났다. 이는 기공의 전체 계면 에너지를 줄이기 위해서 액상이 알루미늄 고상 입자의 계면을 따라 침투되면서 기공 형태가 구형으로 변화하는 과정에 있는 것으로 판단된다.¹⁶⁾ 그런데 기공 주위의 고상 입자들은 이미 치밀화가 이루어져 강한 골격 구조를 이루고 있는 상태이기 때문에 액상이 고상 입체를 통한 침투 즉, 2차 고상 입자 재배열 기구로 기공 형태 변화가 이루어져야 하기 때문에 보다 빠른 치밀화를 위해서는 긴 소결 시간과 높은 소결 온도를 요구할 것으로 믿어진다. 그리고 (c)에는 1650°C 소결 시편의 파단면을 나타내었는데 여기에서는 기공 형태가 거의 등방형으로 나타나고 있어 2차 고상 입자의 재배열 단계가 거의 완료된 것으로 평가되었다.

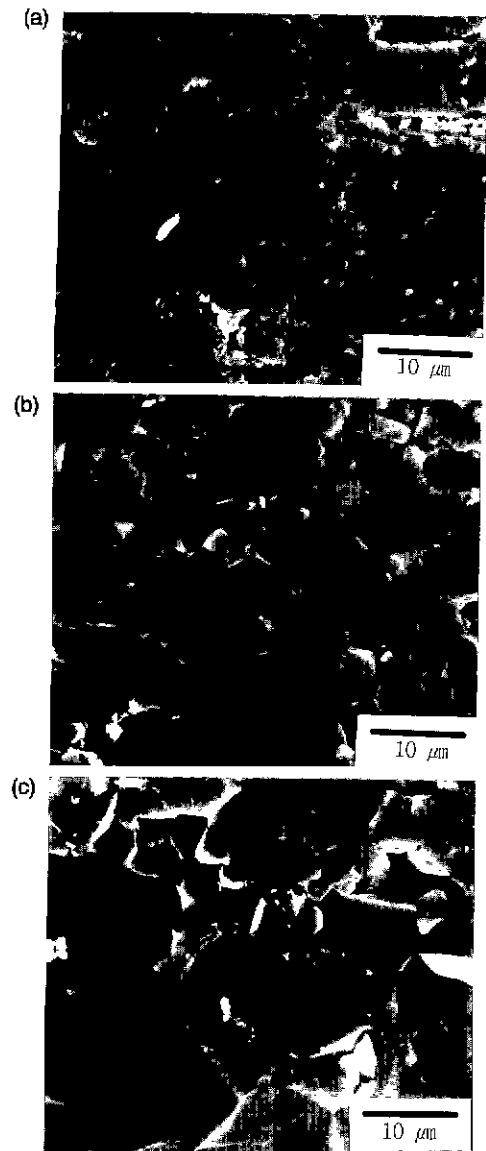


Fig. 7. Microstructures of AES11 specimens sintered at (a) 1450°C, (b) 1550°C and (c) 1650°C for 2 hours with an addition of 5 wt% talc.

반면 Fig. 8에는 AM21 분체 즉, 조대한 알루미늄 분체에 5 wt%의 활석을 첨가하여 소결한 시편의 파단면 사진을 나타내었다. (a)는 1450°C에서 소결한 시편의 미세조직으로서 여기에서는 알루미늄 입자가 조대하여 기지 부분의 치밀화가 이루어지지 않고 있으며 동시에 액상 생성 시에도 고상 입자간 골격 구조를 이루지 못하고 이에 따라 액상 생성에 의해 빠른 고상 입자 재배열을 도모할 수 있어 기공 형태가 비교적 등방적이며 시편 전체를 통해 균일하게 분포된 것으로 믿어진다. 아울러

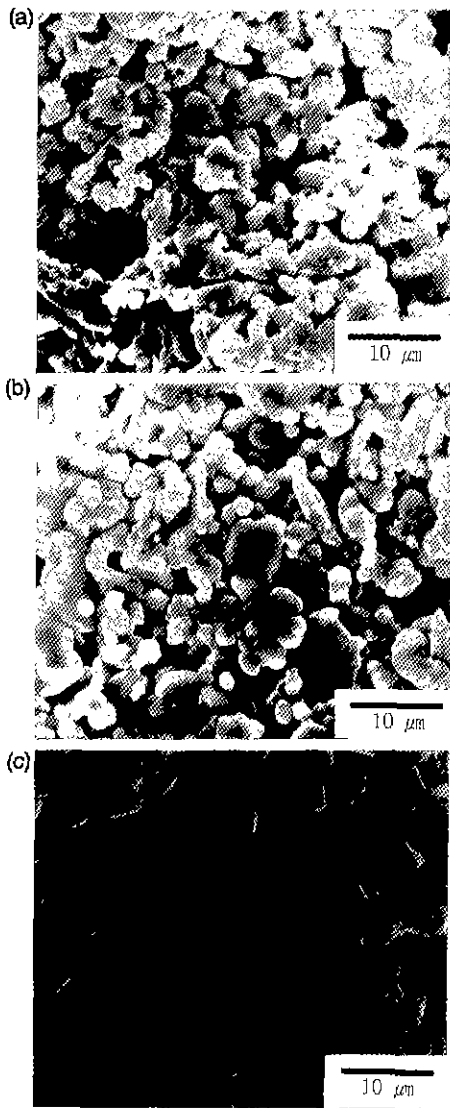


Fig. 8. Microstructures of AES21 specimens sintered at (a) 1450°C, (b) 1550°C and (c) 1650°C for 2 hours with an addition of 5 wt% talc.

(b)와 (c)에 나타낸 것은 1550°C 및 1650°C에서 소결한 시편의 조직 사진으로 소결 온도가 높아질수록 기공 형태의 큰 변화 없이 입성장과 동시에 치밀화가 유발된 것을 알 수 있다.

4. 결 론

알루미나-활석계를 테이프 캐스팅법으로 시트를 제조하는 경우 알루미나 입자 크기 및 활석 첨가량에 따른 슬러리의 유변학적 거동, 그린 시트의 밀도 및 치밀화 거동

을 조사하였다. 알루미나 분체의 입자 크기가 미세할수록, 활석의 첨가량이 증가할수록 슬러리의 의가소성 현상이 심화되었다. 특히 미세한 알루미나를 사용하는 경우에는 액상 생성 이전에 이미 고상 입자들간의 치밀화가 진행되어 1차 고상 입자 재배열이 억제됨에 따라 소결 온도를 증가시키거나 활석 첨가량이 증가하여도 치밀화는 상대적으로 억제되었다. 반면 조대한 알루미나 분체를 사용하는 경우에는 액상 생성 시에도 알루미나 입자들이 서로 골격 구조를 이루지 못하여 고상 입자 재배열이 빠른 시간에 일어나기 때문에 소결 온도를 증가시키거나 활석 첨가를 증가시키면 치밀화가 증진되었다.

REFERENCES

1. Andreas Roosen, "Basic Requirement for Tape Casting of Ceramic Powders," pp.675-92, Ceramic Transactions Vol. 1, Ceramic powder science, Ed. Gary L. Messing, The American Ceramic Society, Inc., Westerville, Ohio, 1988.
2. Philip L. Flaitz and Joseph A. Pask, "Penetration of Polycrystalline Alumina by Glass at High Temperatures," *J. Am. Ceram. Soc.*, **70**(7), 449-55 (1988).
3. Wolfgang A. Kaysser and Marianne Sprissler, "Effect of a Liquid Phase on the Morphology of Grain Growth in Alumina," *J. Am. Ceram. Soc.*, **70**(5), 339-43 (1987).
4. Masae Nakahara, Yutaka Hashizuka, Yoshihito Kondo and Kenya Hamano, "Behavior of Talc in Formation of Cordierite Ceramic," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **102**(1), 18-22 (1994).
5. Oh-Hun Kwon and Gray L. Messing, "Kinetic Analysis of Solution-Precipitation During Liquid-Phase Sintering of Alumina," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**(2), 275-81 (1990).
6. W. D. Kingery, "Densification during Sintering in the Presence of a Liquid Phase. I. Theory," *J. Appl. Phys.*, **30**(3), 301-306 (1959).
7. W. D. Kingery and M. D. Narasimhan, "Densification during Sintering in the Presence of a Liquid Phase. II Experimental," *J. Appl. Phys.*, **30**(3), 307-10, (1959).
8. T. H. Courtney, "Densification and Structural Development in Liquid Phase Sintering," *Metall. Trans. A*, **15A**(6), 1065-74 (1984).
9. R. M. German, *Sintering Theory and Practice*, pp.271-74, John Wiley & Sons Inc., 1996.
10. George W. Scherer, "Theory of Drying," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**(1), 3-14 (1990).
11. K. R. Mikeska and W. R. Cannon, "Dispersants for Tape Casting Pure Barium Titanate," pp.164-83, in *Advances in Ceramics*, Vol. 9. Forming of Ceramics, Ed. by John A. Mangels, The American Ceramic Society, Inc., Columbus, Ohio, 1984.
12. Rodrigo Moreno and Gonzalo Cordoba, "Oil Disp-

- ersion of Alumina for Tape Casting," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **74**(7), 69-74 (1995).
13. Peter A. Smith, "Particle Crowding Analysis of Slip Casting," *J. Am. Ceram. Soc.*, **78**(3), 809-12 (1995).
 14. Rangarajan Pitchumani, "Generalized Fluid Flow Model for Ceramic Tape Casting," *J. Am. Ceram. Soc.*, **78**(9), 2497-503 (1995).
 15. E. F. Osborn and Arnulf Muan, in *Phase Diagrams for Ceramists*, Fig. 712, p. 246, edited by Ernest M. Levin, Carl R. Robbins, Howard F. McMurdie and Margie K. Reser, The American Ceramic Society, Inc., Columbus, Ohio, 1964.
 16. Hyo-Hoon Park, Seong-Jai Cho and Duk N Yoon, "Pore Filling Process in Liquid Phase sintering," *Metall. Trans. A*, **15A**(6), 1075-80 (1984).