Journal of the Korean Ceramic Society
Vol. 43, No. 6, pp. 351~357, 2006.

Fabrication and Physical Properties of Honeycomb Type Cordierite Ceramic Filter Using Fly-Ash

Sung-Jin Kim,* Hee-Gon Bang,* and Sang-Yeup Park*,†**

*Department of Ceramics Engineering, Kangnung National University, Kangnung 210-702, Korea
**Technology Innovation Center for Fine Ceramics, Kangnung National University, Kangnung 210-702, Korea
(Received April 21, 2006; Accepted May 22, 2006)

플라이 애쉬를 이용한 코디어라이트 세라믹 하니컴 필터 제조 및 물성

김성진* · 방희곤* · 박상엽*,†**

*강릉대학교 세라믹공학과
**강릉대학교 파인세라믹기술혁신센터
(2006년 4월 21일 접수; 2006년 5월 22일 승인)

ABSTRACT

The fabrication process of the honeycomb filter was investigated using synthesized cordierite with the addition of pore former and extrusion additives (either organic matter or graphite). Also, the effect of additives on the resultant properties of honeycomb filter such as porosity, thermal expansion coefficient and mechanical strength were investigated. With increasing the organic matter up to 10 wt%, porosity was increased but compressive strength was decreased. With increasing the graphite content, however, both porosity and compressive strength were increased. The specimen with an optimum processing condition (C-17A30G, sintering at 1150°C) was demonstrated 59% in porosity, 69 MPa in compressive strength, and 2.4×10^{-6}/°C (25~1000°C) in thermal expansion coefficient, which physical properties are appropriate for the honeycomb filter applications.

Key words **: *Ceramic honeycomb filter, Cordierite, Fly ash, Physical properties***

1. 서 론

최근 환경규제가 가속화됨에 따라 고온공정에서 발생하는 유해가스 및 먼지를 제거할 수 있는 고온용 세라믹 필터의 개발이 요구되고 있다.[1-3] 코디어라이트 세라믹 하니컴은 일종의 다공성 재료로서 구조적으로 강도를 증진시키고, 형태적으로 비표면적을 증대시켜 활성을 높이는 등의 장점을 가지고 있어서 자동차용 삼원 촉매 담체, 탈질용 촉매 담체, 용융금속용 필터 등으로 많이 쓰여져 왔으며, 최근에는 경유 자동차의 매연제거용 필터를 비롯한 다양한 고온가스용 세라믹 필터의 재료로 사용되고 있다. 세라믹 하니컴에 사용되는 필터 지지체로는 티탄산 알루미나, 뮬라이트, 지르코니아, 스포듀멘, 코디어라이트 등의 재료들이 사용되어 왔으며 이러한 저열팽창성 물질은 온도변화에 따른 부피변화가 매우 작아서 열 충격에 잘 견디고, 자동차 배기가스 정화용이나 회전식 열교환기와 같이 온도변화가 급격한 사용조건에 많이 사용된다.[3] 내열용 재료는 금속 용융용 필터, 내화갑 등 높은 온도조건에서 사용하기 위한 것으로써 미세구조의 조절로 열 충격을 흡수하는 구조로 되어 있다.[4-8] 이중에서 특히 고온에서 사용이 가능하며 실제 하니컴 성형공정에서 결정의 방향을 배열할 수 있어 열 충격 저항을 최소로 줄일 수 있는 코디어라이트를 주 결정상으로 하는 세라믹스는 열팽창계수가 1.1×10^{-6}/°C로서 내열충격 저항성, 화학적 안정성이 우수하여 자동차 배기가스 정화용 지지체, 가스터빈 엔진의 열교환기, 디젤엔진 미립자 포집용 필터 등의 고온 구조재료로 많이 사용되고 있다.[9-12] 코디어라이트 세라믹스의 제조 원료로는 Al_2O_3, SiO_2, MgO 외에도 fly ash, talc, kaolin 등이 사용되고 있다. 이중에서 Al_2O_3, SiO_2가 주성분인 fly ash의 재활용은 에너지 수요와 관련 석탄화력 발전소의 석탄 사용량의 증가와 함께 최근에 들어 급격히 증가하여 유럽 및 일본에서는 이미 재활용율이 80%를 넘고 있고 우리나라에서도 63%에 이르고 있지만 재활용분야가 국내의 경우 건축 토목 분야에 국한되어 있어 다양한 분야의 연구개발이 시급한 실정이다.[13-16] 따라서 본 연구에서는 재활용 측면 차원에서 산업폐기물인 플라이 애쉬를 사용하여 코디어라이트 하니컴을 제조하고자 하였으며 하니컴형 세라믹 필터 지지체를 제조하

†Corresponding author : Sang-Yeup Park
E-mail : sypark@kangnung.ac.kr
Tel : +82-33-640-2363 Fax : +82-33-640-2770

Table 1. Chemical Composition of Fly Ash

Component	Weight percent (wt%)								
	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	K_2O	TiO_2	CaO	SO_3	MgO	Na_2O
Fly ash	48.6	33.2	6.49	5.26	2.30	1.55	1.20	0.979	0.421

여 유기물 함량, 기공형성제의 함량변화, 소결 온도에 따른 세라믹 하니컴의 물성을 관찰하고자 하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서의 출발원료로는 fly ash(영동화력발전소, Korea)로부터 합성된 코디어라이트 분말과 결합제(Methyl Cellulose, Viscosity 4,000 cp, Showa Chemical, Japan), 가소제(Glycerol, 순도 99%, Showa Chemical, Japan), 윤활제(LU-6418, Cell Chemical, Korea)를 사용하였으며 출발원료 분말로 사용된 fly ash의 화학적 조성을 Table 1에 나타내었다. 코디어라이트 분말에 대하여 5, 10 wt%의 결합제, 2, 4 wt%의 가소제, 10, 20 wt%의 윤활제 및 50-70 wt%의 증류수를 가하여 mixer로 충분히 혼합하였다. 혼합시 첨가제가 응집되는 현상을 방지하기 위하여 첨가제는 증류수에 용해시킨 상태로 만들어 혼합하였다. 압출공정은 일차적으로 하니컴 다이를 부착하지 않은 상태에서 혼련 과정을 1-10회 정도 반복하여 automatic porosimeter (AutoPore IV 9510, Micrometrics, USA)로 측정하여 일정한 기공크기를 지닌 조건을 혼련 조건으로 선택하였다. 적당한 기공크기와 점도를 지닌 혼련된 분말을 항온항습 장치에서 24시간 동안 숙성시킨 후 하니컴 다이를 부착하여 압출압력을 조절하면서 하니컴을 성형하였다.

성형된 하니컴 지지체는 급격한 표면수분의 건조를 방지하기 위하여 항온항습 장치에서 습도 60%, 온도 60°C의 조건에서 12시간 동안 숙성시켰다. 건조가 종료된 성형체를 1000~1250°C의 온도에서 2시간 동안 소성하였다. 허니컴 필터의 물성에 대하여 유기물(결합제, 가소제, 윤활제)의 첨가량이 미치는 영향을 살펴보기 위하여 첨가량을 1.0, 2.0배로 변화시켰다. 겉보기 기공율을 높이고 압력손실을 감소시키기 위한 방법으로 유기물 함량을 증가시키는 것 이외에도 기공형성제를 첨가하였다. 기공형성제로는 Kanto Chemical사의 흑연(Kanto Chemical, Japan)을 사용하였으며 흑연 분말 첨가시 원활한 혼련을 위하여, 증류수의 양을 변화시키면서 첨가하였으며 각 첨가제의 양에 따른 조성을 Table 2에 나타내었다.

하니컴 필터의 기본적인 물성을 살펴보기 위하여 수축율, 기공율, 압축강도, 열팽창계수, 미세구조를 측정하였다. 수축율은 다음 식(1)에 의거하여 계산하였으며 기공율은 pycnometer(accoupyc 1330, micromeritics, USA)를 이용하여 측정하였다.

Table 2. Specimen Notations of Cordierite Honeycomb

Notation	Composition
C-17A	Cordierite+17 wt% Additives
C-17A10G	Cordierite+17 wt% Additives+10 wt% Graphite
C-17A30G	Cordierite+17 wt% Additives+30 wt% Graphite
C-34A	Cordierite+34 wt% Additives
C-34A10G	Cordierite+34 wt% Additives+10 wt% Graphite

$$\text{Linear Shrinkage } (\%) = \frac{L_o - L}{L_o} \times 100 \quad (1)$$

L_o : 소성전의 길이
L : 소성후의 길이

하니컴 소결체의 기계적 물성을 측정하기 위하여 재료만능시험기(5882, Instron, USA)와 dilatometer(DIL402, Netzsch, Germany)를 이용하여 각각의 온도에서 소결된 하니컴의 압축강도 및 열팽창계수를 측정하였다. 압축강도 시편의 규격은 표준규격에 맞추어 제조하였으며, 크로스헤드 속도는 5.00 mm/min로 하여 측정하였다. 또한 공정변수에 따른 하니컴 소결체의 미세구조 변화를 전계 방출 주사전자현미경(FE-SEM, S-4700, HITACHI, Japan)을 사용하여 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 열분석 및 치밀화 거동

Fig. 1은 하니컴 제조에 사용된 유기물과 기공형성제로 사용된 흑연의 열처리에 따른 중량 감소 변화를 나타내는 것이다. 유기물의 분해와 휘발에 따른 중량감소가 300°C 이전에 시작되었으며(Fig. 1(a)), 기공형성제로 사용된 흑연의 경우 800°C부터 산화로 인한 중량감소가 나타나기 시작하여, 1420°C에서 열처리 시 87 wt%의 중량감소가 발생하였다(Fig. 1(b)). 흑연에 포함된 불순물(13 wt%)에 대한 XRF 분석 결과 SiO_2 41.2 wt%, Al_2O_3 20.1 wt%, Fe_2O_3 22.6 wt%, CaO 8.23 wt%, K_2O 4.47 wt%, MgO 1.04 wt%, TiO_2 0.38 wt%, SO_3 0.25 wt%, Na_2O 0.212 wt%로 나타났다. 일반적으로 하니컴 필터 제조시 유기물 외에 소결체의 이론 밀도나 소결체의 강도를 증진시키기 위하여 소결 조제를 첨가하지만 본 실험에서는 불순물이 포함된 흑연을 첨가함으로서 이러한 불순물들이 소결 조제로서 작용할 수 있다고 사료되어 불순물이 존재하는 흑연을 사

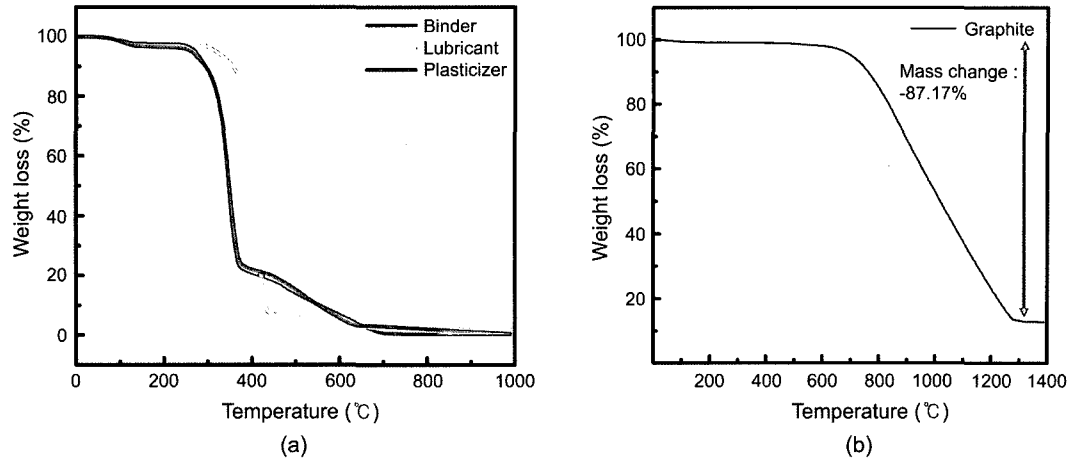

Fig. 1. Thermo gravimetric analysis results of (a) three different organic matters and (b) graphite.

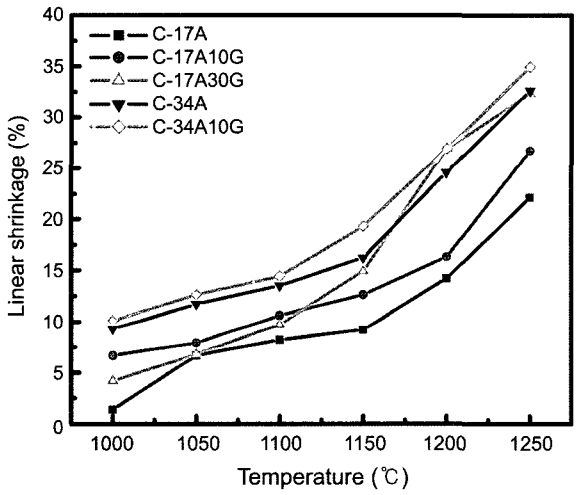

Fig. 2. Linear shrinkage of cordierite with different amount of organic matters and graphite.

용하였으며 흑연을 첨가한 경우와 첨가하지 않은 경우를 비교하였다.

Fig. 2는 소결 온도와 흑연의 함량, 유기물 함량 변화에 따른 하니컴 소결체의 수축율 변화를 나타낸다. 소결 온도가 증가함에 따라 치밀화는 증가하며 유기물의 함량이 증가함에 따라 기공이 많이 형성되어 수축율은 감소하는 경향을 나타내는 것을 확인할 수 있었다. 또한 흑연의 함량이 증가함에 따라 흑연을 첨가하지 않은 소결체보다 같은 온도에서 더 높은 수축율을 나타내는 것을 확인할 수 있었는데 이는 열처리시 흑연에 들어 있는 불순물 등이 일종의 소결조제로 작용함으로서 코디어라이트 입자들간의 결합력을 증진시킨 것으로 판단된다. 모든 조건의 하니컴 수축율은 1150°C의 온도까지는 완만한 수축 거동을 보이는 반면 1200°C에서부터는 급격하게 수축이 진행되는 것을 확인할 수 있었으며 이는 불순물 액상의 점성유동과 모세관력으로 인한 코디어라이트 입자들의 재배열에 의한 결과라고 생각된다.

3.2. 미세구조 변화

Fig. 3은 1150°C에서 소결된 하니컴 필터의 미세구조로서 Fig. 3(a)와 (b)를 비교하면 유기물 함량이 증가함에 따라 기공이 커지면서 기공수가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 흑연을 첨가한 경우와 첨가하진 않은 경우의 미세구조를 비교하면 흑연을 첨가한 하니컴의 미세구조에 좀더 많은 기공수가 존재하는 것을 확인할 수 있었으며 (Fig. 3(c), (d)), 치밀화도 흑연을 첨가한 경우가 첨가하지 않은 미세구조보다 약간 더 증가되었다(Fig. 3(d)). 각각의 조건에서 제조된 Fig. 3(a), (b), (c), (d)의 기공율은 43%, 69%, 43%, 54%을 나타내었다. Fig. 4는 C-17A30G의 조건에서 제조된 하니컴의 소결 온도에 따른 미세구조를 나타낸 것으로 1000°C에서 소결된 하니컴의 경우 다공성화된 상태로 커다란 기공들이 많이 관찰되었다. 한편 1150°C에서 소결한 하니컴의 경우 치밀화가 어느 정도 이루어진 상태에서 작은 기공들이 고르게 분포되어 있는 것이 관찰되었다. 그러나 소결 온도 1250°C에서는 완전히 치밀화가 이루어져 기공이 거의 존재하지 않는 것을 미세구조를 통해 확인하였다. Figs. 3과 4의 미세구조 결과로 부터 유기물 함량이 증가함에 따라 기공률은 증가하면서도 치밀화는 이루어지지 않았으며, 흑연의 함량이 증가함에 따라 기공수의 증가와 함께 기공 분포도 고르게 분포되는 것을 확인할 수 있었다. 또한 소결 온도가 증가함에 따라 치밀화도 흑연 첨가시 흑연을 첨가하지 않은 하니컴 소결체보다 잘 이루어지는 것을 알 수 있었다.

3.3. 물성 평가

Fig. 5는 출발 원료의 혼련 횟수에 따른 기공 분포도이다. 혼련 횟수를 1-10회 정도 반복하여 본 연구에서 부합

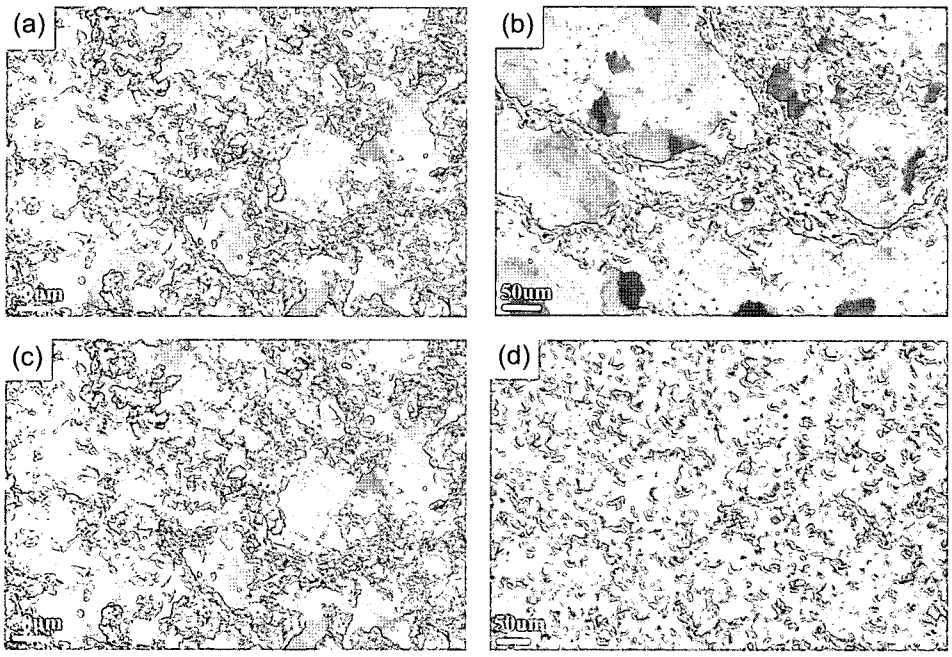

Fig. 3. SEM micrographs of honeycomb microstructure sintered at 1150°C; (a) C-17A, (b) C-34A, (c) C-17A, and (d) C-17A10G.

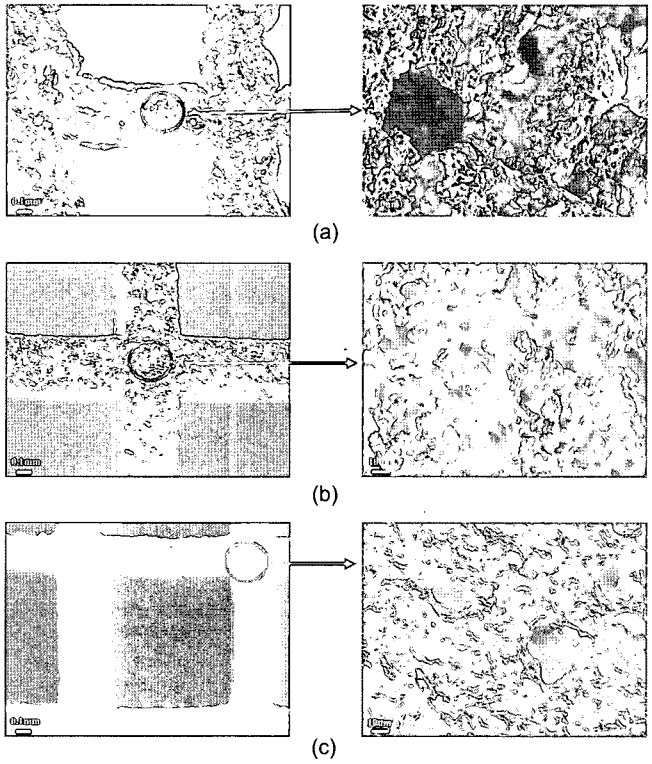

Fig. 4. SEM micrographs of honeycombs microstructure with C-17A30G. Specimens were sintered at (a) 1000°C, (b) 1150°C, and (c) 1250°C.

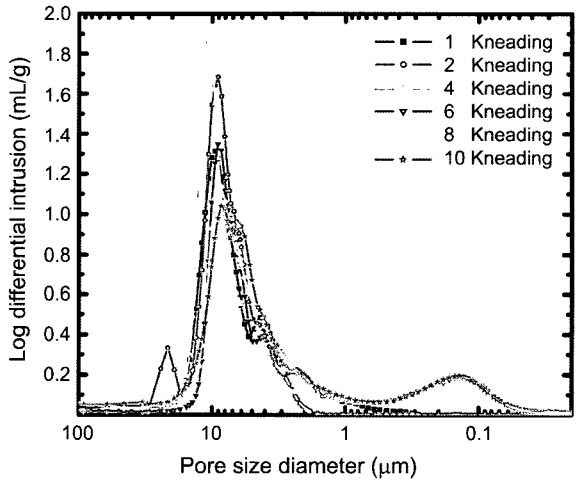

Fig. 5. Pore size distribution with kneading number.

되는 일정한 기공율과 기공분포를 가지는 지점을 혼련 조건으로 선택하고자 하였으며, 측정 결과 혼련을 4회 정도 하였을때 가장 이상적인 기공 분포도와 75%의 높은 기공율을 나타내었다. 혼련 횟수를 5회 이상 하였을 경우엔 급격한 수분의 증발로 인하여 혼련이 원활히 이루어지지 않음을 확인할 수 있었다. 따라서 본 연구에서는 혼련 횟수를 4회로 고정하여 실험을 진행하였다.

Fig. 6은 하니컴 소결체의 겉보기 기공율 데이터로서 유기물 함량이 증가함에 따라 기공율은 증가하는 것을 확인할 수 있었으나 기공형성제로서 사용된 흑연 함량이 증가함에 따라서는 기공율은 큰 증가폭을 나타내지 못하였다. 기공형성제로 사용된 흑연은 열처리시 CO나 CO_2의 형태로 산화되면서 시편내의 기공률을 높이게 되는데 본

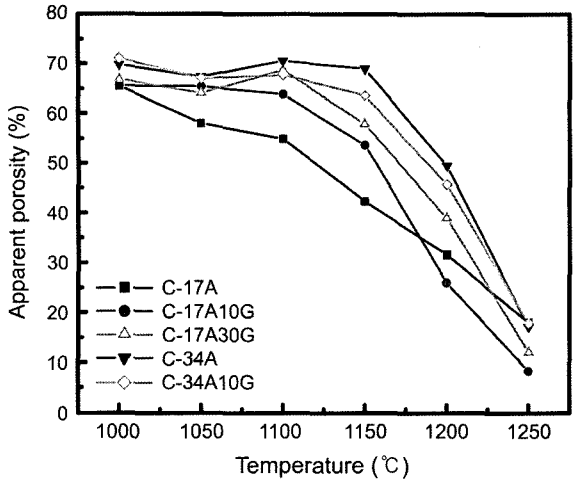

Fig. 6. Change in apparent porosity as a function of sintering temperature for specimens with various amount of organic matters and graphite.

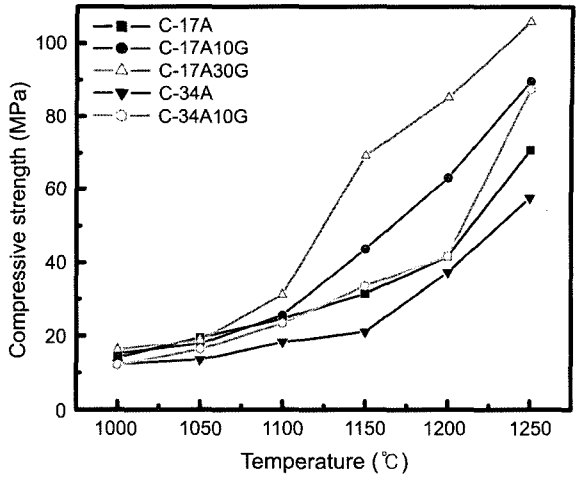

Fig. 8. Change in compressive strength of honeycomb structure as a function of sintering temperature for the specimens with various amounts of organic matters and graphite.

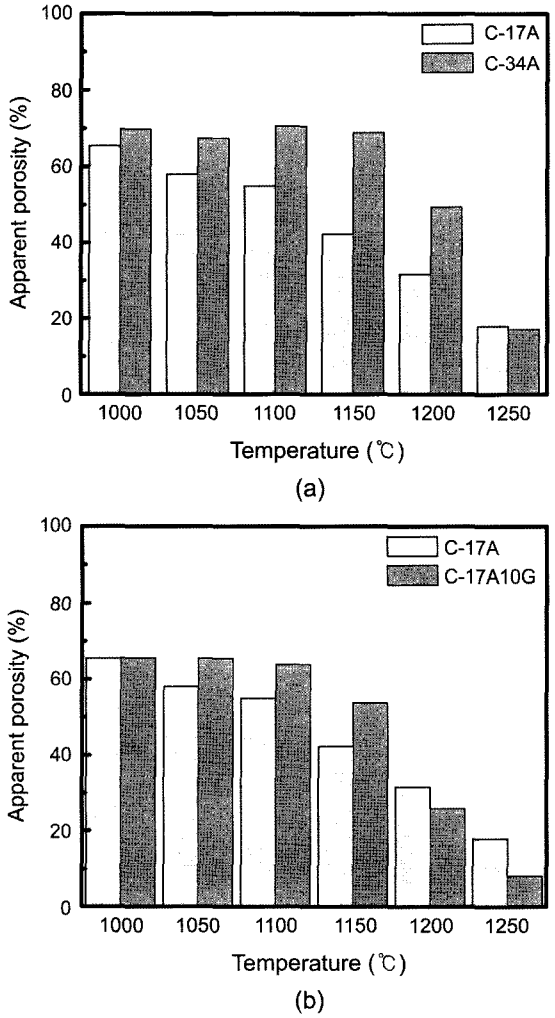

Fig. 7. Comparison of apparent porosity for the two specimens with different amount of (a) organic matters and (b) graphite with heat treatment temperature.

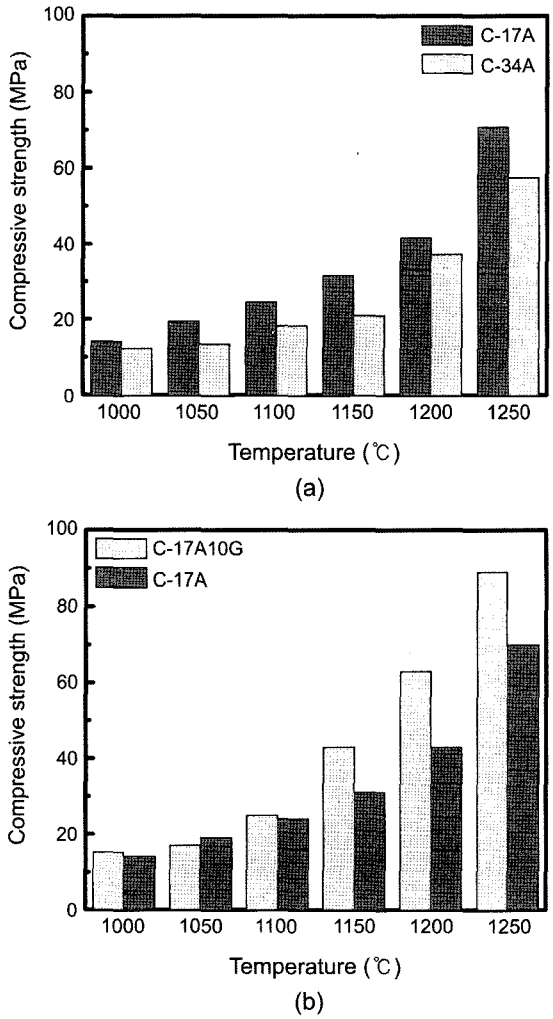

Fig. 9. Comparison of compressive strength for the two specimens contained different amount of (a) organic matters and (b) graphite sintered with temperature.

연구에서는 오히려 유기물 함량에 따른 기공률 증가폭이 더 높은 것을 확인할 수 있었다(Fig. 7(a), (b)). 본 연구에서 첨가된 흑연이 기공률을 크게 증가시키지 못한 이유는 출발원료로 플라이 애쉬를 이용한 코디어라이트의 기공률이 높기 때문이다. 흑연을 첨가하지 않더라도 기공이 많기 때문에 흑연의 첨가가 기공률을 크게 증가시키지 못한 것이라고 사료된다. 또한 소결 온도가 증가함에 따라 치밀화가 증진되어 기공률은 감소하는 경향을 나타내었다.

Figs. 8과 9는 각각의 조건에서 제조된 하니컴의 소결 온도에 따른 압축강도를 나타낸 것으로 1000°C에서부터 1100°C까지는 유기물과 흑연의 함량에 따른 압축강도의 차이가 크게 나타나지 않았으나 1150°C의 소결 온도에서부터는 흑연의 함량이 증가함에 따라 압축강도가 증가하고 유기물이 증가함에 따라 압축강도가 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 또한 유기물 함량이 증가함에 따라 압축강도는 감소하였으며 이는 Figs. 6과 7의 결과와 부합된다. 그러나 흑연의 함량이 증가함에 따라서는 압축강도가 증가하는 경향을 보였는데 일반적으로 소결체의 강도는 기공률이 증가할수록 낮아지지만, 본 실험에서는 흑연의 첨가가 기공률의 증가와 함께 압축강도도 증가시킨 것으로 사료된다. 이는 기공형성제로 사용된 흑연 내에 포함된 불순물 때문이라고 생각되며, 흑연 내에 존재하는 불순물들이 소결 시에 일종의 소결 조제로 작용함으로서 코디어라이트 입자들간의 결합력을 증진시키는 것으로 판단된다.

각각의 조건에서 제조된 하니컴의 소결 온도에 따른 압축강도와 기공율의 변화를 Fig. 10에 나타내었다. 미세구조 결과에서도(Figs. 3, 4) 예상한 바와 같이 소결 온도가 높아짐에 따라 기공률은 감소하고 압축강도는 증가하는 경향을 나타내었다. 다공성 필터로서의 용도를 고려할 때

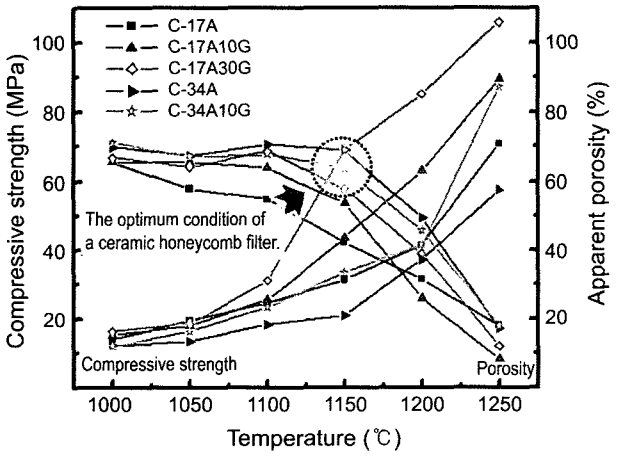

Fig. 10. Variation of compressive strength and apparent porosity in honeycomb structure as a function of sintering temperature for the specimens with different amounts of organic matter and graphite.

Table 3. Linear Thermal Expansion Coefficient of Cordierite Sintered at 1150°C

Group (temperature, °C)	Linear Thermal Expansion Coefficient ($\times10^{-6}$/°C)
	20-1000°C
1000°C	2.61
1050°C	2.63
1100°C	2.57
1150°C	2.52
1200°C	2.75
1250°C	2.83

C-17A30G의 조건에서 제조하여 1150°C에서 소결한 하니컴이 가장 적합하다고 판단되며, 이때의 기공률은 58%이고 압축강도는 69 MPa이었다. 일반적인 세라믹 필터 지지체의 특성이 기공률 40~60%, 압축강도 20~40 MPa임을 감안할 때 본 실험에서 제조된 세라믹 하니컴 필터의 경우 두가지 특성이 모두 부합되며 우수한 압축강도를 지닌 것을 알 수 있었다. 이는 기공형성제로 사용된 흑연이 기공률을 증가시킬 뿐 아니라 흑연에 존재하는 불순물들이 열처리 시 소결 조제로 작용 치밀화를 증진시켜 하니컴 필터의 압축강도를 증진시킨 것으로 사료된다.

C-17A30G의 조건에서 제조된 하니컴의 소결 온도에 따른 열팽창계수 값의 변화를 Table 3에 나타내었다. 모든 소성 온도에서 $2.5\sim3\times10^{-6}$/°C의 열팽창계수를 나타냈으며 1150°C에서 가장 낮은 열팽창계수를 가지는 것을 확인할 수 있었다. 그 이상의 소결 온도에서는 다시 열팽창계수가 증가하는 경향을 나타내었는데 이러한 이유는 다음 식 (2)에 의해 설명 될 수 있다.

$$V = 1/\rho \ (\rho : \text{density}) \qquad (2)$$

$$\text{Thermal Expansion Coefficient (TEC)} = 1/V \ (V : \text{volume})$$

소결 온도가 1150°C 이상으로 증가하게 되면 액상에 의한 치밀화가 이루어지며 이에 따라 밀도 값은 증가하게 된다. 이러한 밀도 값의 증가로 인하여 열팽창계수 값이 다시 증가하는 것으로 사료된다.[17] 25~1000°C의 온도구간에서 열팽창계수 값은 2.5×10^{-6}/°C이었으며 하니컴 필터의 지지체로의 실용화 조건에 부합된다고 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 재활용 측면 차원에서 산업폐기물인 플라이 애쉬를 사용하여 코디어라이트 하니컴을 제조하고자 하였으며 하니컴형 세라믹 필터 지지체를 제조하여 유기물 함량, 기공형성제 함량의 변화, 소결 온도에 따른 세라믹 허니컴의 물성을 관찰하고자 하였으며 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 코디어라이트 하니컴 성형체내의 유기물 함량이 증가함에 따라 기공률은 증가한 반면 압축강도는 감소하였다. 기공형성제로 첨가한 흑연은 같은 소성 온도에서 기공률을 증가시킬 뿐만 아니라 압축강도도 증가시켰다. 이는 기공형성제로서 사용된 흑연이 소결 온도가 증가함에 따라 흑연에 존재하는 불순물에 의하여 입자들의 결합력을 증가, 성형체의 치밀화를 향상시켜 압축강도를 증가시키는 것으로 사료된다.

2. 본 연구를 통하여 제조된 다공성 세라믹 하니컴 필터의 최적의 제조 조건은 30 w% 흑연을 첨가하여 1150°C에서 소결한 허니컴 조성이 가장 적합하다고 판단된다. 이때의 기공률은 57.89%이고 압축강도는 69 MPa, 열팽창계수는 2.4×10^{-6}/°C(25~1000°C)이었다. 일반적인 세라믹 필터 지지체의 특성이 기공률 40~60%, 압축강도 20~40 MPa, 열팽창계수 $1.1-3\times10^{-6}$/°C(25~1000°C)임을 감안할 때 본 실험에서 제조된 세라믹 하니컴 필터의 경우 세가지 특성이 모두 부합되어 오염물질 제거용 촉매 선택에 따라 자동차용, 수질정화용, 대기 정화용 등 모든 산업분야에 적용 가능할 것으로 판단된다.

Acknowledgment

본 논문은 2005년도 강릉대학교 학술진흥 연구비 지원(2005-0152)에 의하여 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. J. D. Chung, "Experimental Results of High Temperature Bench Scaled dust Removal System Using Ceramic Candle Filter," *Environ. Eng. Res.*, **2** [1] 33-40 (1997).
2. Y.-B. Kim, E.-H. Cho, Y.-Y. Chang, H.-S. Lee and D.-K. Choi, "Preparation and Characteristic of Catalyst Coated Cordierite Filter," *Kor. J. Mater. Res.*, **12** [2] (2002).
3. Y. Sawada, K. Hiramatsu, H. kawamoto *et al.*, "Evaluation on Fundamental Properties of Filter Materials a High Temperature," *High Temperature Gas Cleaning*, **II** 393-404 (1999).
4. K. Takane and T. Takeuchi, *J. Jpn. Assoc. Mineral. petrol. Ecib. Geol.*, **16** 101 (1936).
5. A. Bystom, *Ask Kemi. Mineral.*, **15B** 7 (1942).
6. G. V. Gibbs, *Am. Mineral.*, **51** 1068 (1966).
7. E. P. Meagher and G. V. Gibbs, *Can. Mineral.*, 15-43 (1977).
8. J. P. Cohen, F. K. Ross, and G. V. Gibbs, *Am. Mineral.*, 62-7 (1977).
9. M. F. Hochella Jr., G. G. Brown Jr., F. K Ross, and G. V. Gibbs, *Am. Mineral.*, **64** 337 (1979).
10. H. K. Matralis, M. Ciardelli, M. Ruwet, *et al.*, "Vanadia Catalysts Supported on Mixed TiO_2-Al_2O_3 Supports, Effect of Composition on the Structure and Acidity," *J. of Catalysis*, **157** 368-79 (1995).
11. A. Bueno-Lopez, D. Lozano-Castello, I. Such-Basanez, J. M. Garcia-Cortes, M. J. Illan-Gomez, and C. Salinase-Martinez de Lecea, "Preparation of Beta-Coated Cordierite Honeycomb Monoliths by in Situ Synthesis Utilization as Pt Support for NO_x Abatement in Diesel Exhaust," *Appl. Catalysis B : Environmental*, **58** 1-7 (2005).
12. A. Bachiorrini, "New Hypotheses on the Mechanism of the Deterioration of Cordierite Diesel Filters in the Presence of Metal Oxides," *Ceramics International*, **22** 73-7 (1996).
13. Y. He, W. Cheng, and H. Cai, "Characterization of α-Cordierite Glass-Ceramics from Fly Ash," *J. Hazardous Mater.*, **B120** 265-69 (2005).
14. H. Shao, K. Liang, F. Zhou, G. Wang, and F. Peng, "Characterization of Cordierite-Based Glass-ceramics Produced from Fly Ash," *J. Non-Crystalline Solids*, **337**, 157-60 (2004).
15. R. Goren, C. Ozgur, and H. Gocmez, "The Preparation of Cordierite from Talc, Fly Ash, Fused Silica and Alumina Mixtures," *Ceramics International*, **32**, 53-6 (2005).
16. S. Kumer, K. K. Singh, and P. Ramachandrarao, "Synthesis of Cordierite from Fly Ash and Its Refractory Properties," *J. Mater. Sci. Lett.*, **19** 1263-65 (2000).
17. V. N. Zharkov, "On the Dependence of the Coefficient of Thermal Expansion on Density," *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, **109** 79-89 (1998).