

磁器質 素地의 強度에 미치는 石英粒度의 影響

李 應 相 · 金 鎮 龍

한양대 무기재로 공학과

(1983년 11월 15일 접수)

Influence of Particle Size of Quartz on the Strength of Porcelain Body

Eung-Sang Lee and Chin-Young Kim

College of Engineering, Han Yang University

(Received Nov. 15, 1983)

ABSTRACT

The influence of the particle size of quartz and the change of cooling rate to the strength of conventional triaxial porcelain was studied. The results indicate that

1. The residual quartz content was increased by particle size increasing. And the strength was increased by increasing residual quartz content which increased the total stress in the specimen.
But the influence of residual quartz was lessened by the extent of crack between quartz particle and glass matrix.
2. In order to increase the strength of the body, fast cooling is suitable to small quartz particle and slow cooling is suitable to large quartz particle.

I. 서 론

자기의 중요한 구성물질의 하나인 석영은 Kaolin으로부터 생성되는 Mullite 결정과 함께 자기소자의 강도에 중요한 역할을 한다고 알려져 왔다. 자기소자의 강도에 대한 연구는 Mullite에 대한 연구⁽¹⁾와 석영에 대한 연구^{(2)~(21)}들이 주종을 이루어 왔는데 이중 석영에 의한 효과가 더욱 중요시되어, 석영이 갖는 여러 인자들을 중심으로 연구가 수행되어 왔다. 그처럼 자기소자에 석영이 침가됨으로써 강도가 높아지는 원인은, 석영을 포함한 자기소자가 그 소결은도에 놓이면, 석영입자로면 일부는 용융이나 대부분은 미용용 결정상태로 남게 되며, 이때 또 다른 구성원료인 장석은 거의 완전히 녹아 석영입자 주변을 유리상으로 둘러싸게 된다. 이와 같은 상태에서 맹자이 일어날 경우 석영입자의 열팽창 계수가 그주변 유리상의 열팽창 계수보다 커서 석영입자에 압축 내부응력을 일으키게 되는데 이것이 자기

의 강도를 높이는 중요한 역할을 하게 된다. 그러나 석영입자 주변의 유리에 의한 석영입자와 그 주변 유리상간의 간격의 증가는 석영의 크기가 키질수록 증가하여 석영입자가 어느정도 크기 이상에 이르면 그 계면간에 균열을 형성함으로써 오히려 강도를 저하시킨다. 또한 석영이 573°C에서 고온형으로 부터 저온형으로 자체 전이가 일어나는 경우에 심한 부피 변화를 일으킴으로써 균열의 발생은 피할 수 없게 된다⁽¹¹⁾⁽²²⁾. 따라서 알자크기와 강도와의 상관관계에 대한 연구가 집중적으로 이루어져 왔다. 따라서 본 연구에서는 석영입도 변화에 의한 재반물성의 변화를 여러 조성을도에서 측정하여 그 강도와 함께 고찰하였다.

한편 그와는 별개로 1350°C에서 소정한 시편의 냉각속도를 변화시키, 냉각속도 차이에 의한 유리상의 부피변화가 균열을 줄일 수 있는지를 관찰하고 그 변화와 소자의 강도 변화를 함께 고찰하였다.

II. 실험 방법

(1) 원료준비 및 시편제작

본 실험에 사용된 시편의 조성은 자기의 기본조성인 Kaolin 50%, 석영 25%, 장석 25%를 맥하였다. 이들 중 Kaolin은 혼진 Kaolin, 석영은 김천규석, 장석은 안양장석을 사용하였다. 각 원료의 화학성분은 Table. 1과 같다. 이러한 원료중 Kaolin과 장석은 모두 325 mesh 틈과분을 사용하였으며, 석영은 약 32시간 ball

Table 1. Composition of Raw Materials

| Minerals Com- position | Quartz | Kaolin | Feldspar |
|--------------------------------|--------|--------|----------|
| SiO ₂ | 91.71 | 43.2 | 66.6 |
| Al ₂ O ₃ | 4.02 | 39.5 | 22.9 |
| Fe ₂ O ₃ | 0.27 | 0.5 | 0.3 |
| CaO | 0.88 | 1.6 | 0.6 |
| MgO | 0.63 | 0.1 | Tr |
| Na ₂ O | 0.4 | 0.2 | 4.87 |
| K ₂ O | 0.88 | 0.63 | 3.54 |
| TiO ₂ | 0.12 | Tr. | — |
| MnO ₂ | — | 0.02 | — |
| Ig. loss | 1.09 | 13.9 | 1.0 |

mill에서 미분쇄 한것을 5μ 이하, 5~10μ, 10~20μ, 20~30μ, 30~44μ, 44~88μ 등 모두 6 단계로 분급하였으며, 이들과 함께 Kaolin과 장석을 plastic 제 mixer를 사용하여 8시간 동안 전석혼합시켰다. 그후 석영입자 크기별로 분류된 혼합원료들을 11g 취하여 1cm×10cm×0.5cm 의 bar 형태로 800kg/cm²의 압력으로 전식가입 성형하였다. 그 시편들은 110°C 항온 전 조기에서 수분을 제거한후 siliconit로 내에서 4°C/min의 속도로 가열하였으며, 1250°C, 1300°C, 1350°C, 1400°C 등 각각의 온도에서 2시간 유지시킨후 로내에서 냉각시켰다. 또한 냉각속도에 변화를 주기위해, 소정온도 1350°C에서 2시간 유지시킨후 로분의 개방정도를 조절하여 8시간, 4시간, 2시간 등으로 냉각속도를 변화시켰다.

(2) 물성측정 및 잔류석영량 측정

소결이 끝난 시편들에 대해서는 KSL-3114에 의거하여 비중과 흡수율을 측정하였다. 열팽창 계수의 측정은 KSL-3116에 의거하여 수행하였으며 꺾임강도는 Instron Universal Test Machine을 사용하여 抗折荷重을 측정하여 구하였다. 열팽창 계수 측정을 제외한 각

실험은 5개의 시편을 가지고 측정하였으며 균접한 3개의 값을 취하여 평균값을 구하였다. 이상과 같은 기본 물성의 측정과 함께 X-ray에 의하여 소성후 시편에 남아있는 잔류석영량과 생성된 Mullite의 양을 측정하였다. 또한 반사 현미경을 사용하여 x400의 배율로 씨 시편의 마구스 및 crack 상태를 조사하였다. 이정우 시편은 α-Alumina로 polishing 한후 10% HF 용액 내에서 약 15초 정도 etching 하였다.

III. 결과 및 고찰

(1) 입도변화에 따른 물성의 변화

① 흡수율 및 부피비중

가장 기본적인 소결이론으로부터, 똑같은 양의 석영을 첨가하는 경우 입자가 미세할수록 그 전체적인 표면적은 커지게 되는데, 그로인한 반응면적의 증가에 의해 입자가 미세할수록 소결과정은 낮은온도에서도 빨리 일어나게 된다. Fig. 1을 보면 1250°C에서 소성 시킨 경우 10~20μ 이상에서 부터 급격한 흡수율의

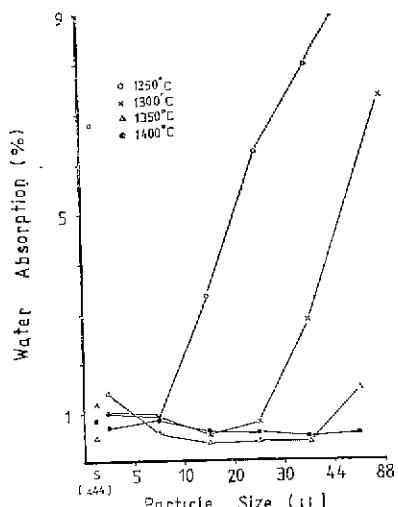


Fig. 1. Water absorption of the fired bodies.

증가를 보이며, 1300°C에서는 30~44μ 이상에서 흡수율이 증가하여, 1350°C에서는 44~88μ 이상에서 흡수율이 증가하여 온도가 낮고 입자가 커질수록 소결이 완료되는 경향을 보이고 있다. 또한 Fig. 2의 부피비중 변화를 보면, 대부분 입자가 커짐에 따라 약간씩 부피비중이 증가하는 경향을 보이며, 온도가 높아질수록 부피비중이 낮아짐을 보임으로써 온도상승과 함께 기공이 증가하고 있음을 보이는데, 흡수율 변화와 상반

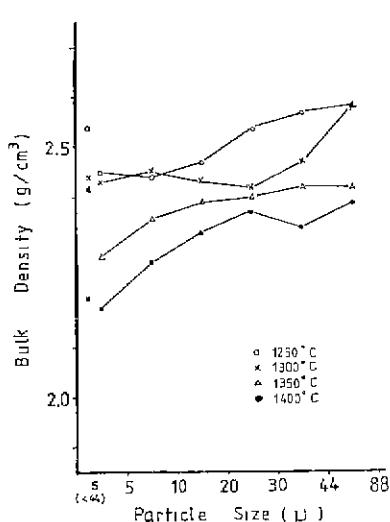


Fig. 2. Bulk density of the fired bodies.

된 경향을 보이는 이유는 시편내부 폐기공의 생성이 입자의 크기에 구애받음이 없어, 단지 기공자체의 내부압력과 그 크기에 의해 온도변화를 따라 확장 혹은 소멸되는 과정을 따르기 때문인 것으로 생각된다.

② 입자크기와 강도와의 관계

유리질 matrix 내에 석영입자가 분산된 일종의 Composite Material 계의 강도에는 여러가지 인자가 복잡하게 연관되어 있다.

Fig. 3에서 보면 모든 온도에서 입자크기가 커짐에 따라 강도가 증가하다가 어느크기 이상에서 부터 급격히 저하되고 있음을 알 수 있다. 1250°C의 경우는 20~30μ이상에서, 1300°C의 경우는 30~44μ 이상에서 강도가 낮아졌는데, 이 경우는 흡수율 측정에서 나타난 것과 같이 소결미숙으로 시편내부의 유리상 부족에 의한 강도의 저하 현상으로 보여지며, 1400°C에서는 44~88μ을 제외하고는 전부 1350°C보다 낮은 강도를 보이며 30~44μ에서 강도의 절이점을 보이는데 이는 파소에 의한 전반적인 강도의 저하로 보여진다. 따라서 본 논문에서는 앞서의 물성 측정과 본 강도의 측정에서 가장 좋은 결과를 보인 1350°C 소성시편을 중심으로 입자크기에 따른 강도의 변화를 알아보기로 한다.

※ 석영입자의 양과 강도와의 관계

입자의 크기를 변화시켜 석영을 첨가한 경우, 비록 초기 첨가량이 모두 같더라도 석영입자가 작을수록 반응면적이 넓어져서 실제소결이 끝난후에는 입자크기

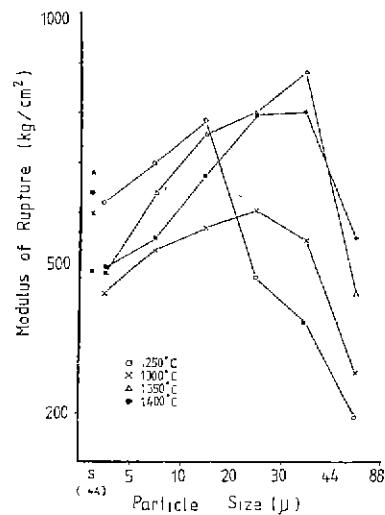


Fig. 3. Modulus of rupture of the fired bodies.

에 따라 잔류석영량이 달라지게 된다. Fig. 4의 잔류석영량 비교그림에서 보면 5μ 이하와 5~10μ 크기의 입자들은 거의 대부분 용융되었으며, 입자가 커질수록 잔류석영량이 증가하였음을 알 수 있다. 이와같은 잔류

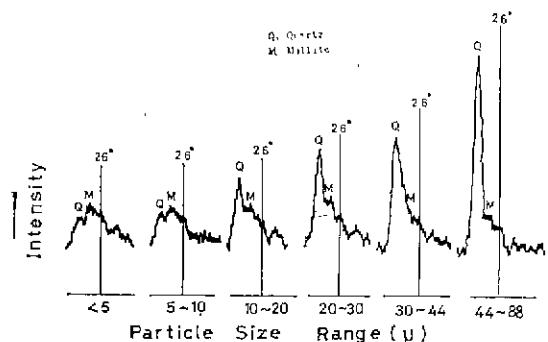


Fig. 4. Relative Residual Quartz Contents by X-Ray Peak

석영량의 증가는 두가지 면에서 강도에 영향을 주게된다. 즉, 석영량의 증가에 의한 입자간격의 변화가 강도에 영향을 주며, 석영량의 증가에 의한 시편 전체 응력의 변화가 강도에 영향을 끼치게 된다. 우선 입자간 거리변화에 의한 영향을 살펴보면 Hasselman과 Fulrath⁽¹⁷⁾, 그리고 Lange⁽¹⁸⁾에 의하면 입자의 크기가 작고 잔류석영량이 많을수록 입자간격은 줄어들며, 따라서 강도가 증가한다고 하였다. 하지만 본 실험의 결과는 입자의 크기와 잔류석영량이 동시에 증가함을 보였다. 따라서 본실험에서의 잔류석영량의 증가를 적

접적인 입자간 간격의 감소로는 볼수 없으며, 결국 입자간격에 의한 강도 증가 현상은 기대할수 없다. 두번 째로 석영입자의 양과 응력의 관계는 Selsing⁽²⁰⁾과 Kingery⁽²¹⁾에 의하면 응력이 입자의 크기에 관계없이 입자와 유리상의 탄성을, 열팽창 차이, 냉각온도 범위로 부터 정해 진다는 것을 알수 있다. 즉 소결후 냉각이 되는경우 열팽창계수 차이로 응력이 날개하기 시작하는데 이 응력은 냉각이 진행됨에 따라 증가하면서 탄성을과 Poisson's ratio 등에 의해 적절한 양을 유지하게 된다. 그러나 만일 그양이 일정한 수준을 넘게되는 경우 그 넘은양은 계면에서 균열의 형태로 방출된다. 따라서 입자만경이 커지는 경우 입자와 유리상과의 간격이 커지게되어 응력은 일정한 수준을 유지하게 된다. 결국 한 시편내의 응력의 절대량은 입자 크기가 아닌 석영입자의 부피비에 의존한다는 것을 알 수 있다. 따라서 앞서고찰되었던 전류석영량의 효과는 응력과의 관계에 적용될 수 있다. 즉, 입자크기가 커짐에 따라 전류석영량이 많아졌고, 결국 시편내부의 전체 내부응력의 양도 증가하여 이것이 강도를 높이게 했다는 결론을 내릴수가 있다. 따라서 Fig. 3의 1350°C 소성시편의 강도 변화와 Fig.4의 전류석영량과 비교해 볼때, 입자가 커짐에 따라 전류석영량이 증가하여 30~44μ 까지 강도를 높게 하였음을 알수 있다. 하지만 44~88μ에서는 강도가 급격히 저하하였는데 이러한 결과는 앞의 생각과는 매우 상반된 결과로 보여진다. 하지만 그와같은 현상은 앞서 흡수율을 측정에서 보인 유리상의 부족 및 입자크기의 급격한 확대로 인한 균열의 확대로부터 기인된 것으로 보여진다. 즉 균열은 입자 크기가 커짐에 따라 더욱 확대되어 처음에는 부분적으로 생기다가, 입자가 커지면서 입자 주변연체, 입자와 입자사이까지 확대된다. 따라서 44~88μ에서 급격히 입자가 커짐에 따라 균열이 급증하여 전류석영량의 증가에도 불구하고 오히려 강도가 저하했음을 알 수가 있다.

이상과 같은 석영의 영향과 함께 다시 Fig. 3 와 Fig. 4로 돌아가 Mullite 양과 강도와의 관계를 살펴보면 Mullite의 양은 석영입자 크기변화에 관계없이 거의 일정하므로 본실험에서 나타난 강도의 변화가 Mullite의 아무런 관계가 없음을 알 수가 있다.

(2) 냉각속도 변화에 의한 물성의 변화

냉각속도 변화에 따른 유리상의 부피변화와 균열과의 관계를 알기위해, 앞서의 실험에서 가장좋은 물성과 강도를 보인 1350°C 소성시편에 대해 그 냉각속도를 8시간, 4시간, 2시간 등으로 변화시켜 그 제반물성

과 강도 및 열팽창계수를 측정, 고찰하였다.

① 흡수율 및 부피비중

Fig. 5의 흡수율 변화를 보면 44~88μ 입자크기를 제외한 대부분의 입자를 포함하는 시편들이 1%미만의 흡수율을 보여 거의 원색한 소결이 이루어졌음을 보이

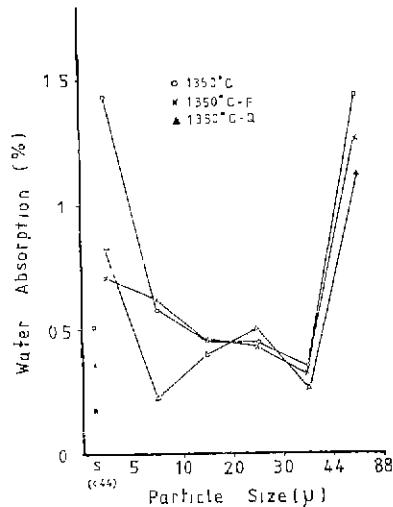


Fig. 5. Water absorption of the fired bodies.

고 있다. 한편 대체적으로 냉각속도가 빨라질수록 흡수율이 낮아지는 것을 보임으로써 냉각속도 변화에 의해 open pore가 감소하였음을 알수가 있다. Fig.6의

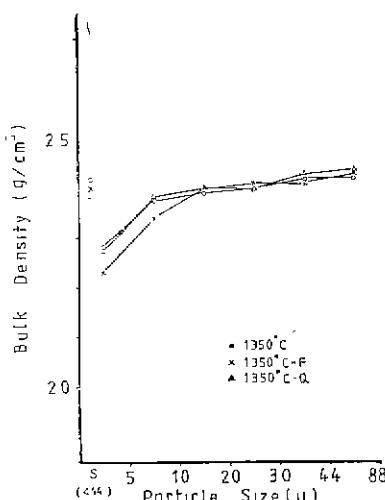


Fig. 6. Bulk density of the fired bodies.

부피비중 변화를 보면 5μ 이하를 제외하고 대부분의 입자크기에 걸쳐 약 2.4정도의 값을 보이며 4시간 냉각한 것이 10μ 이하에서 약간 낮아진 값을 보일뿐 냉각속도에 변화없이 거의 일정한 값을 보이고 있다. 이상과 같은 흡수율과 부피비중의 변화를 비교할 때 냉각속도가 빨라진수록 흡수율의 감소를 보임으로써 Open pore의 감소를 보인 반면에 부피비중은 거의 변하지 않았음을 의결상 매우 이상하게 보일수가 있다. 하지만 그와 같은 결과는 냉각이 빨라짐에 따라 유리상의 표면상 팽창이 Closed pore의 증가를 가져옴으로써 Open pore의 감소와 상쇄되었다고 생각할수 있다. 그와 같은 생각은 다음에 보일 미구조 사진에서 보다 분명해진다.

② 냉각속도 변화에 의한 강도변화

석영입자와 그 주위 유리상 간의 열팽창 차이에 의한 cracking 현상은, Davidge 와 Green⁽¹⁴⁾에 의한 식에 의하면

$$G_c = \frac{12(1-\nu)\gamma}{(\Delta\varepsilon)^2 E}$$

여기서 G_c : Cracking이 생길수 있는 입자크기

ν : Poisson's ratio(입자)

E: 탄성율(입자)

$\Delta\varepsilon$: 입자와 유리상간의 거리

γ : 위치주변을 따라 crack을 형성하기 위한 에너지

따라서 열팽창계수 차이에 의한 $\Delta\varepsilon$ 가 커질수록 균열이 생기는 입자크기는 작아짐을 알 수 있다. 결국 냉각속도가 빨라지는 경우 석영에는 별다른 영향이 없으나 주변의 유리상 matrix는 석영입자 주변으로 부터 들어드는 양이 적어진다 그 결과 $\Delta\varepsilon$ 가 적어지며, 이로인해 동일입자의 경우 균열이 줄어들 것이라는 생각을 할 수가 있다. 이와같은 가정하에 Fig. 7을 보면 냉각시간이 4시간인것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{f}$)은 8시간인것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{C}$)과 별로 다른 효과를 보이지 않으나 2시간인것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{Q}$)은 30μ 이하 까지는 8시간 냉각한 것보다 높은 강도를 보임으로써 앞서의 가정과 잘 일치하였다. 하지만 30μ 이상이 되면서 부터 8시간 냉각한것 보다 더 낮은 강도의 저하를 보여 가정과 어긋나는 결과를 보였다. 이와 같은 현상에 대해 우리는 다음과 같은 생각을 적용할 수 있다. 즉, 냉각속도 변화는 단지 소결후 유리상이 고체화되는 과정에서 생기는 균열을 줄일수 있을뿐 573°C 에서 석영의 자체전이에 의해 생기는 균열의 생성을 저지하지 못한다. 결국 30μ 이하까지의 입자에서는 냉각속도 변화로 crack이 다소 줄어들었으므로써 강도가 증가하였으나, 30μ 이상이 되면서 그와같은 균열감소현상은 본래의 균열이 커짐에 따라 줄

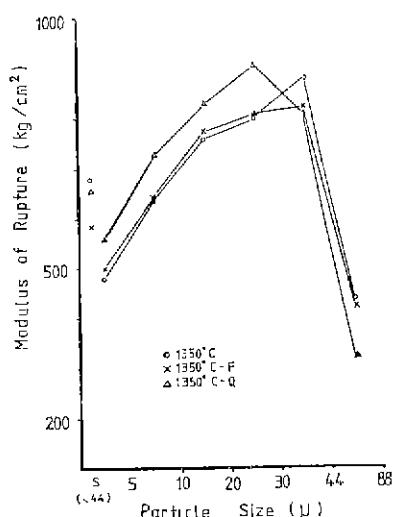


Fig. 7. Modulus of rupture of the fired bodies.

어들고, 오히려 흡수율과 부피비중 측정에서 나타난 것처럼, 빠른 냉각이 가져온 closed pore의 증가에 의해 증가한 pore가 균열과 작용하여 균열을 증가시킨 효과로 나타난 것으로 보여진다.

앞서의 많은 논문들은 석영량이 증가함에 따라 소성시편의 열팽창 계수가 커지며 균열이 많아질수록 열팽창 계수가 적어짐을 보인다. 따라서 8시간 냉각시편과 2시간 냉각시편 각각에 대한 열팽창 계수를 측

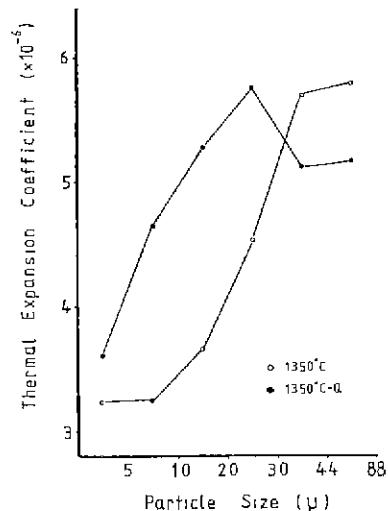


Fig. 8. Thermal expansion of the fired bodies.

정하여 보았다. 그 결과는 Fig. 8을 보면, 8시간 냉각 시킨 경우 석영입자가 커짐에 따라 열팽창 계수가 증가하였음을 보이고 있는데 이는 석영입자가 커짐에 따라 증가한 잔류석영량에 의한 것으로 여겨진다. 한편 2시간 냉각한 것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{Q}$)은 30μ 이하까지는 8시간 냉각한 것 (1350°C)보다 높은 열팽창 계수를 보인다. 그러나 30μ 이상에서부터 급격한 저하를 보였다. 이와 같은 결과는 앞서 생각한 대로 바른 냉각이 30μ 이하까지는 균열을 감소시켰으나, 30μ 이상부터 오히려 균열을 증가시켰을 것이라는 생각과 잘 일치하고 있다. 이와 같은 결과들은 다음의 미구조 사진으로 부터 더욱 분명해진다. Fig. 9는 5μ 이하의 석영입자를 포함하는 경우 인데 커다란 점은 반점이 기공이며, 작은 밝은 반점이 석영입자에 해당한다. 이 경우에 2시간 냉각한 것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{Q}$)

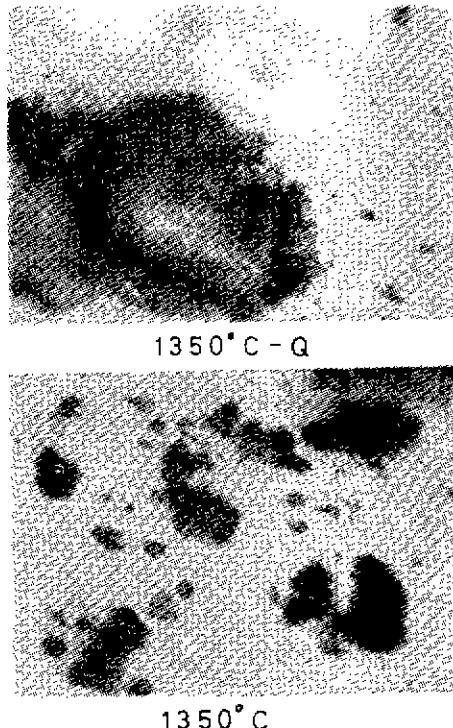


Fig. 9. Microstructure of Samples Containing 5μ Quartz(X 400)

$^{\circ}\text{C}-\text{Q}$)은 매우 커다란 기공이 생겼음을 알 수 있으며 석영입자와 유리상간의 균열 현상을 보이지 않는다. Fig. 10은 $20\sim30\mu$ 크기의 석영입자를 포함한 것으로 2시간 냉각한 것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{Q}$)은 균열이 부분적으로 형성되었을뿐 입자주변의 균열은 보이지 않으나 8시간 냉

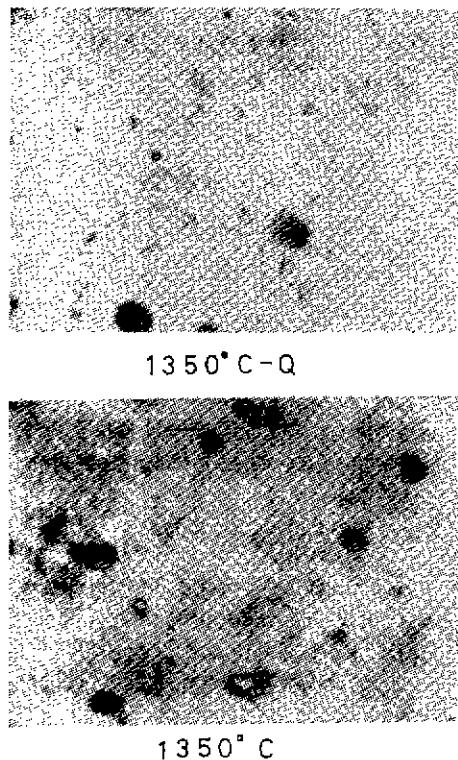


Fig. 10. Microstructure of Samples Containing $20\sim30\mu$ Quartz(X 400)

각한 것 (1350°C)은 입자주변을 따라 뚜렷한 균열을 볼 수가 있다. 따라서 $20\sim30\mu$ 에서 바른 냉각을 한 것이 균열을 줄여, 보다 높은 강도를 나타냈던 것을 증명하고 있다. Fig. 11은 $44\sim88\mu$ 크기의 석영입자를 포함한 경우인데 8시간 냉각한 것 (1350°C)은 입자크기에 따른 꾸준한 균열의 확대와 573°C 에서의 전이에의한 석영내부의 균열만을 보인 반면, 2시간 냉각한 것 ($1350^{\circ}\text{C}-\text{Q}$)은 주변의 crack과 석영입자의 균열과 더불어 중심부의 기공과 균열이 작용하여 기공까지 균열역할을 하게 하는 양상을 보이고 있다. 따라서 이 경우에 바른 냉각을 한 시편이 더 낮은 강도를 보인데에 대한 앞서의 고찰을 뒷받침 해주고 있다.

이상의 결과들을 종합해 볼 때 석영입자가 작은 경우는 바른 냉각이 강도증진에 유리하고, 석영입자가 큰 경우에는 느린 냉각이 유리하다는 결론을 얻을 수 있다.

IV. 결 론

이상의 결과들을 종합하여 다음과 같은 결론들을 내

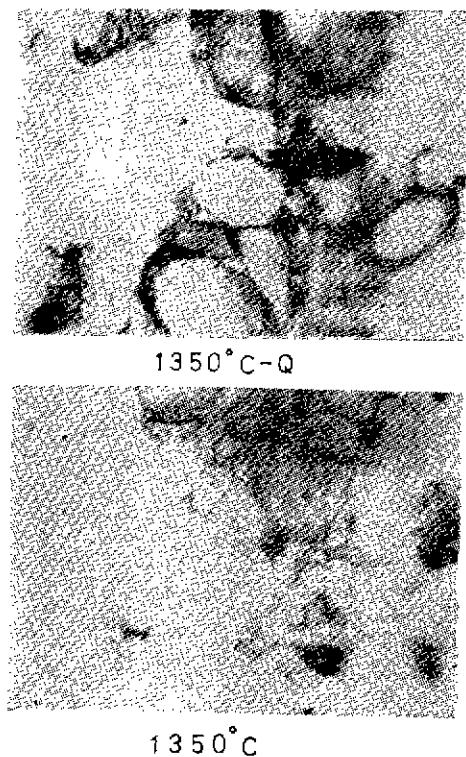


Fig. 11. Microstructure of Samples Containing 44~88 μ Quartz (X 400)

될수 있다.

- 석영입자 크기의 증가는 잔류석영량의 증가를 가져왔으며 그로인한 시편 전체용력의 증가에 의해 강도가 증가하였다. 하지만 그러한 증가는 균열이 확대됨에 따라 감소하였고, 44~88 μ 에서 급격한 강도의 저하를 보였다. 따라서 석영입자 크기 변화에 따른 강도의 변화는 잔류석영량과 균열에 의해 결정됨을 알 수 있었다.
- 작은입자는 낮은 소결온도가 적당하였고 온도가 높아질수록 파손되었다.
- 큰 입자는 높은 소결온도가 요구되었으며 낮은 온도에서는 소결 미숙을 보였다.
- 석영입자가 작은경우 빠른 냉각이 강도 증진에 유리하며, 입자가 큰 경우 느린 냉각이 유리하였다.

참 고 문 헌

- A. Zoellner, Sprech. 41, 47, 490, 504, 519, 533 (1908).
- (a) Otto Krause, "Relationships between Grain

Size of Quartz and Properties of Hard Porcelain; I-II," *Sprechsaal* 70 (49) 611-12; (50) 623-25; (51) 633-35; (52) 647-48 (1937).

(b) Otto Krause and Ursula Klempin, "Relationships between Particle Size of Quartz and Properties of Hard Porcelain; III," *ibid.*, 75 (23-24) 229-31; (25-26) 251-55 (27-28) 273-76; (47-48) 480 (1942).

- A. Dietzel, "Significance of Equilibrium Diagrams for Ceramics," *Sprechsaal*, 86 (10) 251-52, (1953).
- Hans Marzahn, "Influence of Quartz on the Strength of Porcelain," *Ber. Deut. Keram. Ges.*, 32 (7), 203-11 (1955).
- R.M. Fulrath, "Internal Stress in Model Ceramic Systems," *J. Am. Ceram. Soc.* 42 (9), 423-29 (1959).
- L.N. Grossman and R.M. Fulrath, "X-Ray Strain Measurement Techniques for Ceramic Bodies," *J. Am. Ceram. Soc.* 44 (11), 567-71 (1961).
- D. Binns: pp. 315-34 in *Science of Ceramics Vol. 1*, Edited by C.H. Stewart, Academic Press New York 1962.
- (a) K.H. Schüller and K. Stark, "Theory of internal Stress in Porcelain," *Ber Dtsch Keram. Ges.*, 32 (7), 203-11 (1955).
- (b) K.H. Schüller, "The Influence of Quartz on the Stress in Porcelain," *ibid.*, 39 (5), 286-93 (1962).
- S.I. Warshaw and R. Seider, "Comparison of Strength of Triaxial Porcelains Containing Alumina and Silica," *J. Amer. Ceram. Soc.* 50 (7), 337-343 (1967).
- K. Hamano and E.S. Lee "Studies on the Mechanical Properties of Porcelain Bodies," Bulletin of Tokyo, Inst. of Tech. 108, 666.5, 95-111 (1972).
- "Introduction to Ceramics," by Kingery p. 506, Fig. 10 ,44.
- "Physical Ceramics," by L.H. Van Vlack. p. 112, Fig. 7-19.
- W.J. Frey and J.D. Mackenzie, "Mechanical Properties of Selected Glass-Crystal Composites," *J. Mater. Sci.*, 2 (2), 124-30 (1967).
- R.W. Davidge and T.J. Green, "The Strength of Two-Phase Ceramic/Glass Materials," *ibid.*,

- 3 (6), 629-34 (1968).
- 15) J.S. Nadeau and J.I. Dickson, "Effects of Internal Stress Due to Dispersed Phase on the Fracture Toughness of Glass," *J. Am. Ceram. Soc.* **63** (9-10), 517-523 (1980).
- 16) D.P.H. Hasselman and Fulrath, "Proposed Fracture theory of Dispersion-Strengthened Glass Matrix," *ibid.*, **49** (2), 68-72 (1966).
- 17) Orville Hunter, Jr. and W.E. Brownell, "Thermal Expansion and Elastic Properties of Two phase Ceramic Bodies," *ibid.*, **50** (1), 19-22 (1967).
- 18) F.F. Lange, "Fracture Energy and Strength Behavior of a Sodium Borosilicate Glass-Al₂O₃ Composite System," *ibid.*, **54** (12), 614-624 (1971).
- 19) R.L. Fullman, "Measurement of Particle Size in Opaque Bodies," *Trans. AlME* **197** (3), 447-52 (1953).
- 20) W.D. Kingery, "Note on Thermal Expansion and Microstress in Two-phase Compositions," *J. Am. Ceram. Soc.* **40** (10), 351-52 (1957).
- 21) Jorgen Selsing, "Internal Stress in Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.* **44** (8), 419 (1961).