

용융침투법으로 제조한 유리-알루미나 복합체: I. 알루미나 입도 효과

이득용[†] · 장주웅* · 김대준** · 박일석**** · 이준강** · 이명현**** · 김배연[#]

대림대학 재료정보공학과

*(주)우리동명 치과재료연구소

**KIST 복합기능세라믹센터

***연세대학교 세라믹공학과

****KICET 차세대사업단

[#]인천대학교 재료공학과

(2001년 5월 8일 접수; 2001년 7월 26일 승인)

Glass-alumina Composites Prepared by Melt-infiltration: I. Effect of Alumina Particle Size

Deuk Yong Lee[†], Juwoong Jang*, Dae-Joon Kim**, Il-Seok Park****, Jun-Kwang Lee**,
Myung-Hyun Lee**** and Bae-Yeon Kim[#]

Department of Materials Engineering, Daelim College of Technology, Anyang 431-715, Korea

*Dental Material Research Center, We DongMyung Co., Ltd., Kwangmyung 423-060, Korea

**Multifunctional Ceramics Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 130-650, Korea

***Department of Ceramic Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

****Next Generation Enterprise Group, Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology, Seoul 152-023, Korea

[#]Department of Materials Engineering, University of Incheon, Incheon 402-749, Korea

(Received May 8, 2001; Accepted July 26, 2001)

초 록

상용 알루미나 분말(0.5 μm , 3 μm)을 die-press법을 이용하여 1120°C에서 2시간 1차 소결하여 다공성 전성형체를 제조하고 1100°C에서 4시간 $\text{La}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 유리를 용융 침투시켜 치밀한 유리-알루미나 복합체를 제조하였다. 알루미나 입도가 유리-알루미나 복합체의 충전율, 미세조직, 젖음성, 기공률 및 크기, 기계적 특성에 미치는 영향을 조사하였다. 입도 범위가 0.1~48 μm 로 넓고 bimodal size 입도 분포를 가지면서 random orientation을 가진 3 μm 알루미나가 분산된 복합체가 최적의 기계적 특성 및 충전률이 관찰되었으며 강도와 인성값은 각각 519 MPa, 4.5 $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 이었다.

ABSTRACT

Two commercial alumina powders having different particle size of 0.5 μm and 3 μm were presintered at 1120°C for 2 h and then lanthanum aluminosilicate glass was infiltrated at 1100°C for up to 4 h to obtain the densified glass-alumina composites. The effect of alumina particle size on packing factor, microstructure, wetting, porosity and pore size, and mechanical properties of the composite was investigated. The optimum mechanical properties and compaction behavior were observed for the 3 μm alumina particle dispersed composite. The 3 μm alumina particle size and distribution of the preform were within 0.1 to 48 μm and bimodal and random orientation. The strength and the fracture toughness of the composite having 3 μm alumina particles were 519 MPa and 4.5 $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$, respectively.

Key words : Alumina, Lanthanum-aluminosilicate glass, Melt-infiltration, Die-pressing, Mean particle spacing

1. 서 론

치아수복시 심미성의 요구증대와 수복시 일반적으로 사용되었던 금속에 의한 부작용등에 따라 세라믹 인공치아(dental implant) 및 치관(all-ceramic crown)등의 개발이 지속적으로 연구되어 왔다.¹⁻³⁾ 상용 인공치관은 In-Ceram 방

식인 slip casting법을 이용 제조하여 사용되었다. 석고몰드에 slurry를 붓으로 여러번 칠하면서 건조시켜 두께를 조절 한 다음 1차 소결하여 다공성 전성형체(porous preform)을 만든 후 유리를 용융침투(melt-infiltration) 시켜 제조하는데 많은 시간과 기술이 요구되는 복잡한 공정이다.²⁾ 또한, In-Ceram 방식의 최대 단점은 균일한 두께를 얻는데 많은 어려움이 있다. 최근에는 slip casting법의 단점을 보완한 doctor-blade를 이용한 tape casting법이 연구 발표되었다.⁴⁾

[†]Corresponding author : dylee@daelim.ac.kr

Doctor-blade로 만든 tape를 석고볼드에 열간 가압하여 소결하여 제조하는 방식으로 균일한 두께와 제조비용을 절감할 수 있는 이점이 있다. 하지만 tape casting법은 tape 제조시 첨가되는 용매, 분산제, 결합제, 가스제, 소포제등 많은 유기물을 함유하므로 최적의 조건을 충족시키는데는 많은 경험과 시간이 소요된다.^{4,5)}

최근에는 일반 상용분말을 직접 1차 소결하여 bulk type의 CAD/CAM용 전성형체를 제조한 후 3차원 laser scanner를 이용 환자의 수복용 치아를 읽은 후 CAD/CAM을 이용하여 인공치관 형상을 제작하는 Direct Ceramic Machining(DCM) 방식이 연구 개발되었다.^{5,6)} 상기 방식은 인공치관 제조시 tape casting법 보다 제조비용을 더욱 절감할 수 있으며, 공정 중에 발생할 수 있는 잠재적 위험요소들을 줄일 수 있는 이점이 있다.⁶⁾

Slip casting 및 tape casting법으로 제조한 전성형체를 이용한 유리-알루미나 복합체에 대한 연구가 주로 진행되어 왔으나 상용분말을 이용하여 die-pressing하여 제조한 CAD/CAM용 전성형체를 이용한 유리-알루미나 복합체에 대한 연구는 현재까지 미미한 실정이다. 본 연구에서는 두 개의 입자크기가 다른 상용 알루미나 분말($0.5\ \mu\text{m}$ 와 $3\ \mu\text{m}$)을 이용하여 die-pressing법으로 CAD/CAM용 전성형체를 각각 제조한 후 유리를 용융 침투시켜 복합체를 제조하여 알루미나 입도가 인공치관용(all-ceramic crown) 유리-알루미나 복합체의 충진율, 미세조직, 젖음성, 기공률 및 크기, 기계적 특성에 미치는 영향을 조사하였다. 또한, 같은 크기의 알루미나 분말을 이용 die-press법과 doctor-blade법으로 전성형체를 제조한 후 유리-알루미나 복합체를 제조하여 기계적 특성을 비교 분석하였다.

2. 실험방법

출발물질인 알루미나 분말은 평균입경이 $0.5\ \mu\text{m}$ (AES-11, Sumitomo, Tokyo, Japan)와 $3.0\ \mu\text{m}$ (AL-M43, Sumitomo, Tokyo, Japan)를 각각 사용하였다. 직경이 20 mm인 금형을 이용하여 두께가 3 mm가 되도록 1차 성형한 후 140 MPa의 압력으로 2차 정수압 성형하였다. 성형체는 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 승온속도로 1120°C 까지 승온한 후 2시간 유지한 후 노냉하였다. 부분적으로 소결된 알루미나 위에 함침용 유리분말과 증류수를 섞어 바른 후 $30^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 승온속도로 1100°C 까지 승온한 후 4시간 유지하여 유리가 시편내로 완전히 용융 침투되어 복합체가 형성되도록 하였다. 상기 실험조건은 In-Ceram의 제조공정과 같은 조건을 사용하였다.^{1,4)} 원판형 복합체 시편은 $0.04\ \mu\text{m}$ 의 알루미나 slurry를 이용하여 최종 경면 가공하였으며 960°C 에서 10분간 열처리하여 가공 중에 발생될지 모르는 응력을 제거하였다.⁴⁾ 가공 후 복합체의 최종두께는 1.7 mm이었다.

복합체에 사용된 함침용 유리는 $\text{La}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 알루

미나 침투용 유리로서 In-Ceram의 조성을 기준으로 제조하였다.¹⁻³⁾ 제조방법은 고순도 시약을 사용하였으며 칭량한 분말들을 마모 유발을 이용하여 건식 혼합한 후 백금 도가니에 장입하여 전기로에서 1400°C 에서 2시간 유지한 후 수냉하여 프리트 한 후 디스크 밀(Pulverisette 13, Fritsch GmbH, Germany)을 이용하여 분쇄하고 100 메쉬를 전통하였다.

출발물질인 상용 알루미나 분말의 평균입경 및 분포는 레이저 particle size analyzer를 이용하여 측정하였으며 소결체의 상대밀도는 아르키메데스법을 이용하여 측정하였다. 알루미나 분말의 충진율은 tap density(Autotap AT-2, Quanta Chrome Co., Boynton Beach, USA)를 측정하여 결정하였다. 유리전이온도와 열팽창계수는 dilatometer(Dil402C, Netzsch, Germany)를 이용하여 $100\sim 600^\circ\text{C}$ 온도범위에서 측정하였으며 전성형체의 기공 크기와 분포는 수는 porosimeter(Autopore II 9220, Micrometrics, USA)로 0.04에서 400 MPa의 압력범위에서 측정하였다. 알루미나 전성형체와 유

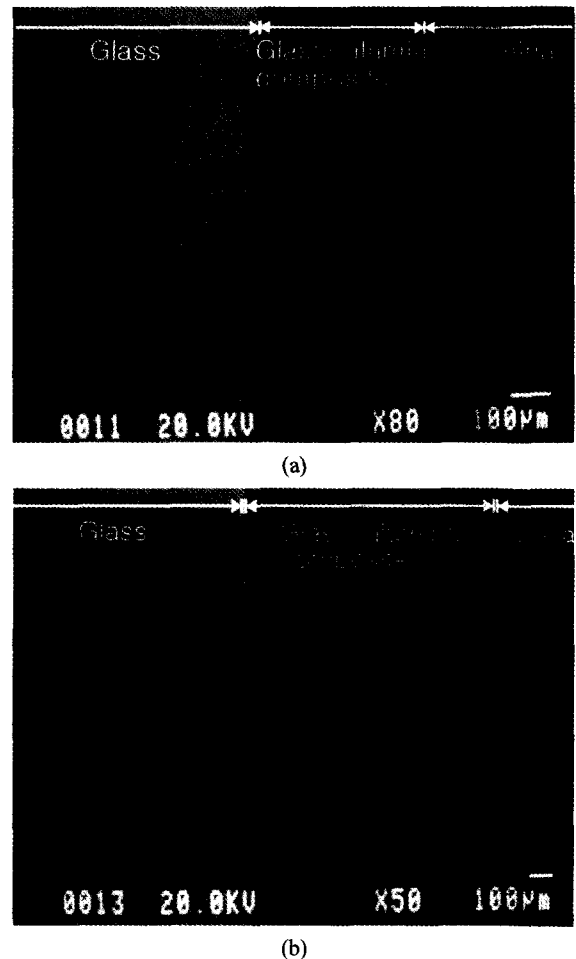


Fig. 1. Interfacial microstructure of the alumina with $\text{La}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glass after soaking for 0.1 h at 1100°C . Alumina particle size is (a) $0.5\ \mu\text{m}$ and (b) $3\ \mu\text{m}$, respectively.

리와 의 젖음성(wetting)은 고온현미경(Heating microscopy, Easytech, Korea)을 통하여 관찰하였으며 복합체의 미세조직과 성분분석은 전자현미경(SEM/EPMA, JXA-8600, Jeol, Japan)을 이용하여 수행하였다.

복합체의 기계적 특성인 강도와 인성은 이축곡강도(biaxial flexural strength)법과 indentation-strength 방법을 각각 이용하였다.⁷⁻⁹⁾ 강도값은 ASTM F-394-78⁷⁾와 ISO 6474⁸⁾에 의거 결정하였으며 파괴인성은 Chantikul등이⁹⁾ 제안한 식을 이용하여 각각 결정하였다. 강도와 인성값 실험방법은 참고 문헌에 자세히 기술되어있다.¹⁰⁻¹²⁾

3. 결과 및 고찰

유리를 1100°C에서 0.1시간 용융 침투시킨 유리-알루미나 복합체의 단면조직이 Fig. 1에 나타나있다. 알루미나와 유리는 원자번호 차이 때문에 각각 검은색과 흰색으로 관찰되었다.²⁾ 시각적으로는 알루미나 입도가 작은 복합체의 경

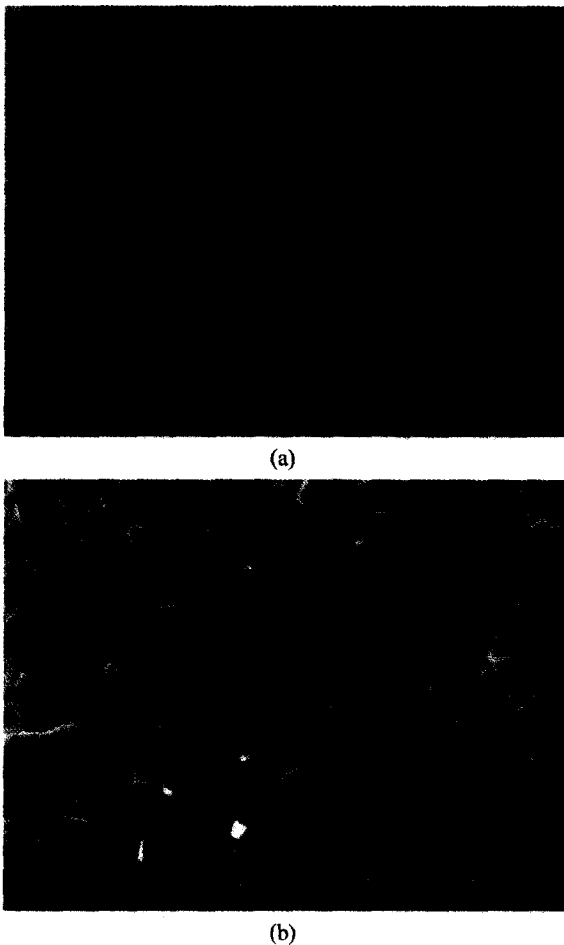


Fig. 2. SEM micrographs of imaged with backscattered electrons of (a) 0.5 μm and (b) 3 μm, respectively. Microstructure consists of alumina skeleton (dark areas) and glass-filled pores (white areas).

우 밝게 보여 유리분율이 높아 보였지만 분석결과 복합체 내의 유리 부피분율은 각각 29.0%와 44.3%로 3 μm 알루미나가 첨가된 복합체가 높았다. 유리-알루미나 복합체의 겉보기 밀도값은 각각 3.85 g/cm³, 3.81 g/cm³이었다. 알루미나와 유리의 이론밀도를 각각 3.97 g/cm³과 3.667 g/cm³로³⁾ 가정하고 부피분율을 고려하여 계산한 결과, 상대밀도 값은 각각 99.1%와 99.3%로 용융 침투법으로 제조한 유리-알루미나 복합체의 치밀화가 우수한 것으로 관찰되었다.

유리-알루미나 복합체의 표면조직이 Fig. 2에 나타나 있

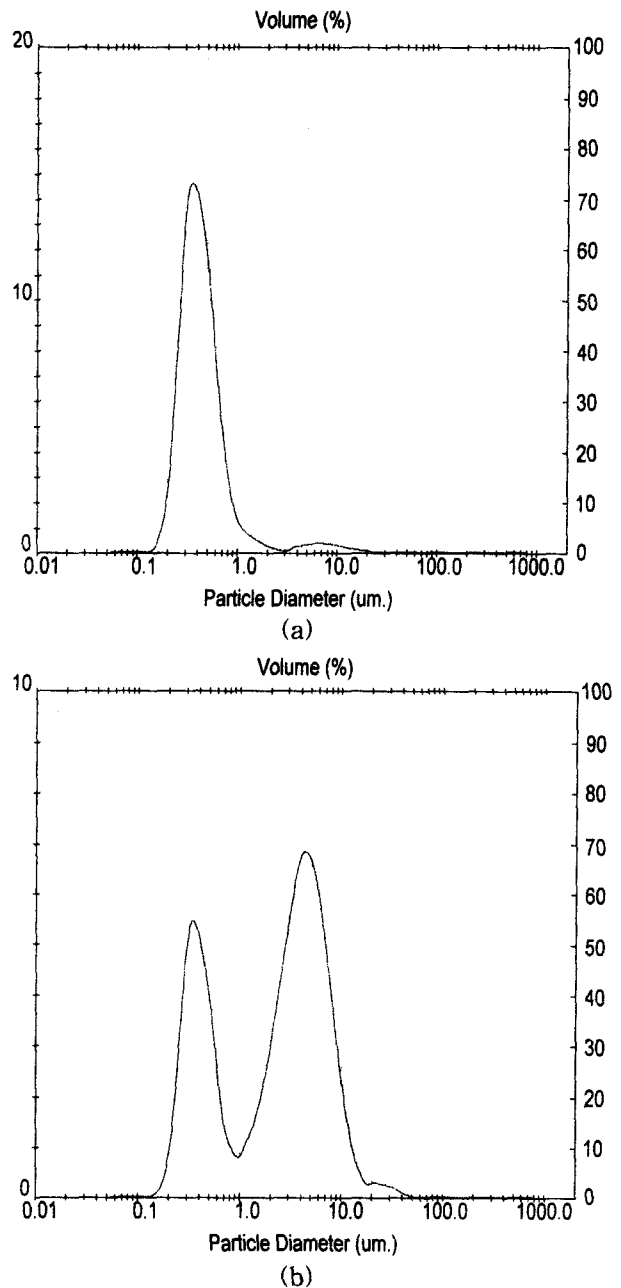


Fig. 3. Particle size distribution of the as-received (a) 0.5 μm and (b) 3 μm alumina powders, respectively.

다. 복합체 제조에 사용된 3 μm 알루미나는 그 형태와 직경이 0.1 μm 구형(distorted sphere)에서 6 μm 의 판상형(facet)에 이르는 넓은 범위로 입도 범위는 Fig. 3에서 보는 것처럼 0.1 μm ~40 μm 이었다. 0.5 μm 알루미나 분말의 입도 범위는 0.1 μm ~30 μm 이었다. 두가지 다른 알루미나 입도 범위는 크게 차이는 없었지만 입도 분포 형태의 차이가 관찰되었다. Fig. 3에서처럼 0.5 μm 알루미나 분말의 입도 분포는 single size 분포이지만 3 μm 분말의 입도 분포는 bimodal size 분포를 가지고 있었다. 이러한 형태와 크기 분포로 인하여 3 μm 평균 입경을 나타내는 복합체가 0.5 μm 알루미나가 분산된 복합체 보다 매우 우수한 충전(compaction) 특성을 갖는 것으로 추정된다.¹³⁾ 이러한 충전특성(packing factor)은 tap density를 측정하여 분석한 결과 알루미나 입자가 0.5 μm 에서 3 μm 로 증가함에 따라 22%에서 28%로 증가하였다. 따라서, bimodal size 입도 분포를 가지면서 입도 범위가 넓은 3 μm 알루미나 분말이 충전 특성에 효과적인 것으로 추정되었다.

전성형체내의 알루미나 분포는 X-선 회절분석기를 이용하여 측정하였다. Slip casting과 tape casting법으로 제조한 알루미나는 일반적으로 casting 방향으로 입자들이 preferred orientation을 갖는다고 보고되었다.³⁾ Fig. 4(a)에서 보는 것처럼 doctor-blade로 제조한 전성형체의 경우, 일정 결정면들은 ($l \gg h, k$) 강한 intensity를 나타내는 반면 ($hk0$)면들의 intensity가 급격히 감소하는 것이 관찰되었다. 하지만, 상용 분말을 직접 사용하여 die-pressing하여 제조한 전성형체의

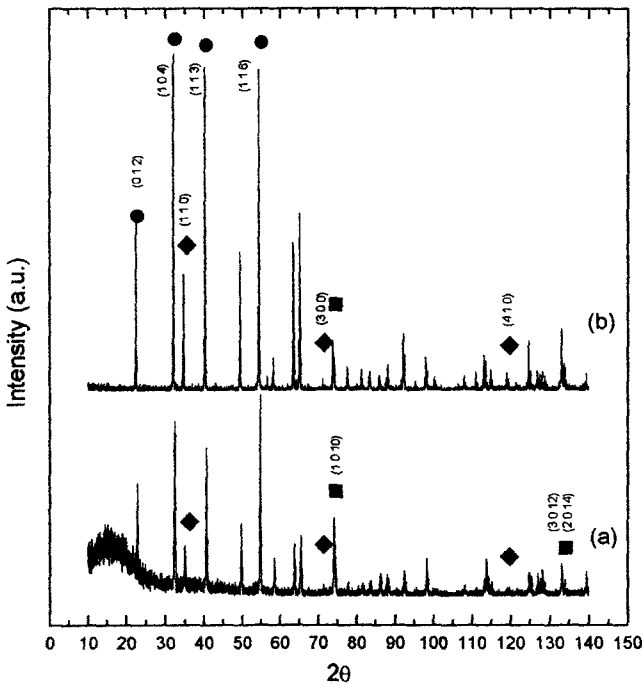


Fig. 4. XRD patterns of the alumina preforms prepared by (a) doctor-blade and (b) die-pressing, respectively.

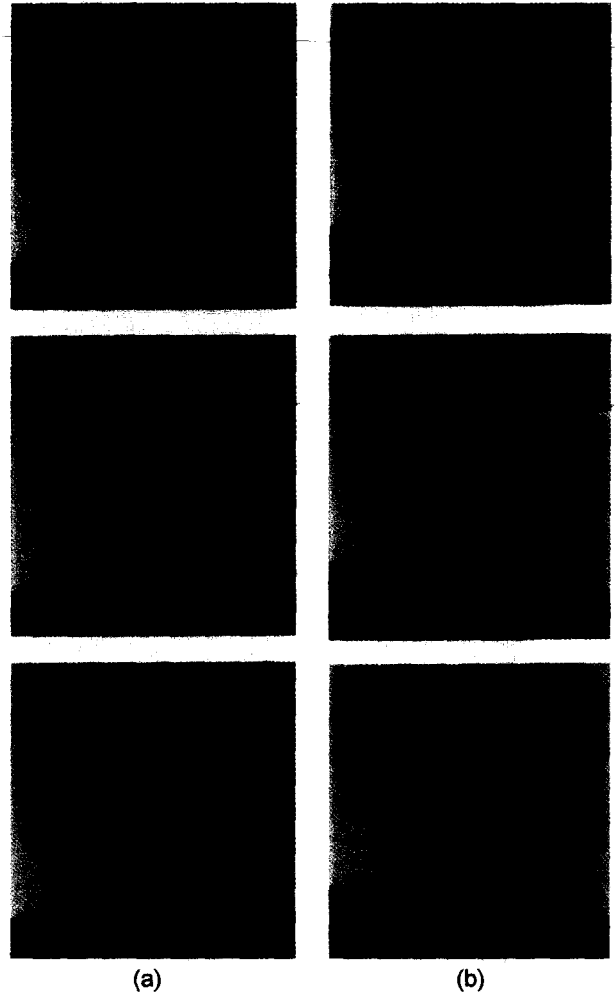


Fig. 5. Photographs of glass on alumina preforms having different particle size of (a) 0.5 μm and (b) 3 μm , respectively, at temperatures from 1000°C to 1100°C.

경우에는 (hkl)면들의 intensity가 모두 관찰되어 알루미나 입자들이 random orientation을 가지며 분포되어 있다는 것이 관찰되었다. 그러므로, 알루미나 입자가 random하게 분포되어 있는 알루미나 전성형체가 충전물이 우수하여 유리 침투에 효과적인 것이라 추정된다.¹⁴⁾

알루미나에 유리 젖음성을 고온현미경으로 1050°C~1100°C 까지 측정한 결과가 Fig. 5에 나타나있다. 알루미나 평균 입경 차이에 상관없이 유리는 알루미나 표면 위에 고루 퍼져서(spread) 알루미나 입자들을 coating한 후 모세관 압(capillarity)에 의하여 완전 침투되는 것이 관찰되었으며 접촉각도(contact angle)는 0도이었다. 100°C~600°C 온도범위에서 유리와 알루미나의 열팽창계수를 측정한 결과 각각 6.98×10^{-6} , $7.81 \times 10^{-6} \text{ C}^{-1}$ 이었다. 유리 전이온도(T_g)는 670°C이었다. 일반적으로 알루미나의 열팽창계수는 7.4×10^{-6} ~ $8.2 \times 10^{-6} \text{ C}^{-1}$ 라고^{2,4)} 보고되었는데 본 연구에서 측정한 결과와 잘 일치하였다. Wolf등에²⁾ 의하면 유리-알루미나 복합체의

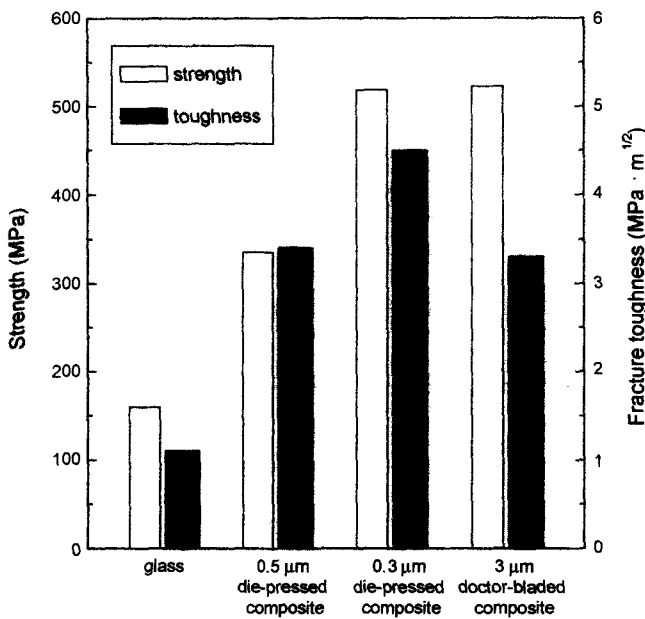


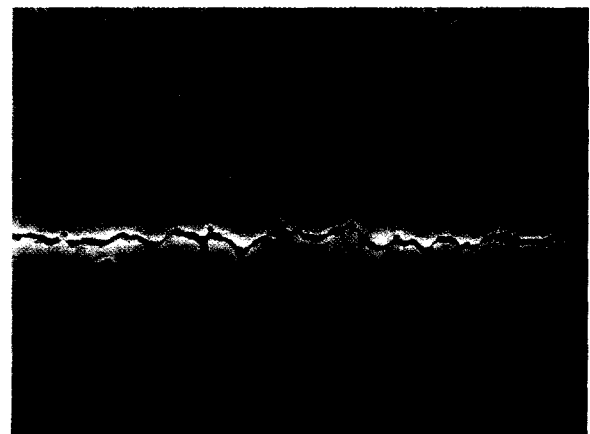
Fig. 6. Strength and fracture toughness of the glass and the glass-alumina composites. The alumina preforms were prepared by die-pressing or doctor-blade technique.

경우에는 열팽창계수 차이가 $1.9 \times 10^{-6} \text{ C}^{-1}$ 이하일 때는 복합체의 기계적 물성에 영향을 전혀 미치지 못 한다고 보고 되었다. 따라서, 본 연구에서 유리와 알루미나 열팽창계수 차이인 $0.83 \times 10^{-6} \text{ C}^{-1}$ 은 유리-알루미나 복합체의 기계적 물성에 효과가 없을 것으로 추정된다.

유리-알루미나 복합체의 강도와 인성값이 Fig. 6에 나타 내었다. 0.5 μm와 3.0 μm가 분산된 복합체의 강도와 인성값은 각각 $335 \pm 88 \text{ MPa}$, $3.4 \pm 0.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 와 $519 \pm 83 \text{ MPa}$, $4.5 \pm 0.3 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 이었다. 0.5 μm가 분산된 복합체의 상대적으로 낮은 기계적 물성은 낮은 밀도값 및 충전률 때문으로 추정된다. 또한, 알루미나 입자 크기의 함수인 작은 기공 크기(0.08 μm)로 인하여 유리 침투의 어려움을 유발시켜 (29 vol%) 복합체의 치밀화가 완전하지 못하여 기계적 특성이 낮은 것으로 사료된다. 반면에, 3 μm 알루미나 분말은 bimodal size 알루미나 입도 분포를 가지므로 충전률(compaction)이 좋아지고 0.44 μm의 기공 크기는 유리 침투에 (44.3 vol%) 효과적이었다.

$\text{La}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 유리의 강도와 인성값은 각각 160 MPa, $1.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 으로 보고되었다.^{2,4)} 따라서, 유리-알루미나 복합체로 제조 시 유리보다 강도값은 ~3.2배, 인성값은 ~4배정도 증가하였다. 1600°C 이상의 온도에서 소결한 다결정 알루미나의 강도값은 302~488 MPa의 범위 값으로 보고되었다.¹⁵⁾ 그러므로, 유리-알루미나 복합체로 제조시 유리나 알루미나 자체의 기계적 특성보다 우수하였다. Doctor-blade로 제조한 유리-알루미나 복합체의 경우 강도와 인성값은 각각 523 MPa, $3.3 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 이라고 보고되었

다.¹⁶⁾ Doctor-blade법으로 제조한 복합체와 비교하여 보면 강도값은 알루미나 입자 크기의 함수이므로 별 차이가 없는 것으로(519~523 MPa) 관찰되었다. 반면에, 파괴인성값은 die-pressing으로 제조한 복합체가 doctor-blade법으로 제조한 복합체보다 $1.2 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 정도 우수하였다. Die-pressing으로 제조한 복합체가 doctor-blade로 제조한 복합체보다 알루미나 분율(solid loading)이 약 4%정도 많았다. Kim⁴⁾과 Lee¹⁶⁾등은 doctor-blade법으로 제조한 세라믹 입자 복합체의 인성 강화 기구들 중에 입자간 거리에 의해 지배되는 기구는 crack bowing이며 파괴인성은 $\text{La}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 유리와 알루미나 평균입자간 거리(mean particle spacing)의 역수, $[4R(1-\Phi)/3\Phi]^{-1}$ (R: 알루미나 입자 반경, Φ : 알루미나 부피분율)와 직선적인 관계를 갖는다고 발표하였다.^{4,16)} 그러므로, 같은 크기의 알루미나 분말을 사용한 본 연구에서 doctor-blade법 보다 알루미나 분율이 4% 많은 die-press법을 이용하여 제조한 복합체가 $[\text{알루미나 평균입자거리}]^{-1}$ 가 $0.11 \mu\text{m}^{-1}$ 정도 크므로 파괴인성값의 증가를 초래한 것으로 추정된다.^{4,16-21)}



(a)



(b)

Fig. 7. SEM micrographs of imaged with backscattered electrons of the indented (a) 0.5 μm and (b) 3 μm alumina dispersed glass composites, respectively.

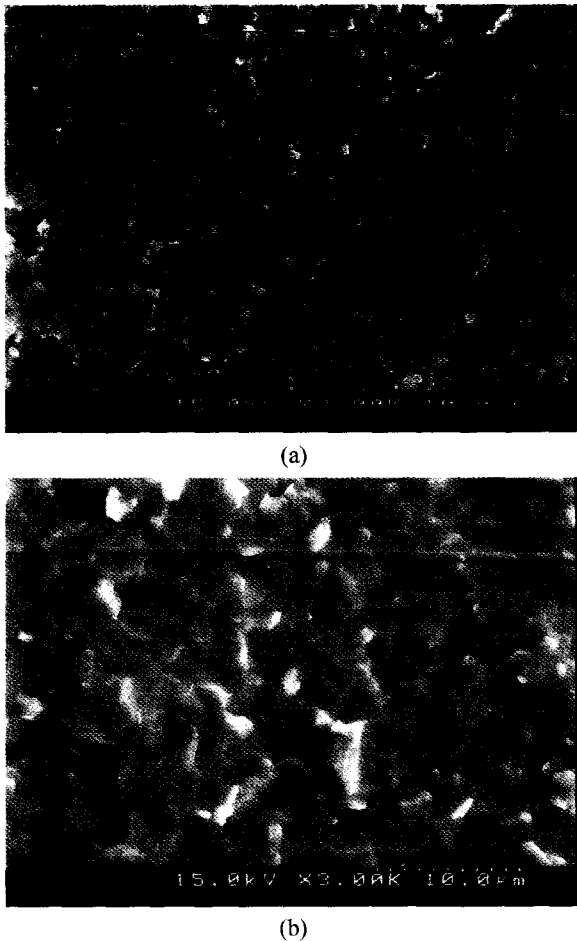


Fig. 8. SEM micrographs of imaged with backscattered electrons of fracture surfaces of (a) 0.5 μm and (b) 3 μm alumina dispersed glass composites, respectively.

Fig. 7의 압흔에 의한 균열관찰에서 보는 것처럼 0.5 μm 알루미나 입자는 3.0 μm 알루미나 입자에 비하여 균열전파시 저항성(crack pinning)이 상대적으로 낮은 것이 관찰되었다. 균열 편향(crack deflection)과 균열접속(crack bridging) 효과가 관찰되었지만 기여도는 매우 적는데 이는 알루미나와 유리의 열팽창계수 차가 무시할 정도로 작으며 유리의 응력온도(strain temperature)가 비교적 낮기 때문이다.^{4,16)} 균열과 알루미나 입자간 결합의 결과인 복합체 파단면의 step과 protrusion 현상이 Fig. 8에서 관찰되었다. 그러므로, 알루미나 입도가 증가할수록 Fig. 8에서 보는 것처럼 알루미나 입자와 균열간의 강한 결합에 의하여 인성값이 증가하는 것으로 추정된다.¹⁹⁻²¹⁾ 또한, 알루미나 입자 복합체의 인성 강화 기구들 중에 random한 알루미나 입자 분포를 가진 die-press법이 preferred orientation을 가진 doctor-blade법 보다 알루미나 충전(compaction)에 도움이 될 것이라 사료되나 이에 대한 체계적인 연구가 차후 요구된다.

4. 결 론

Die-pressing법으로 제조한 알루미나 전성형체에 La_2O_3 - Al_2O_3 - SiO_2 계 유리를 침투시켜 만든 유리-알루미나 복합체는 단일 인공치관 및 브리지 인공치관 응용에 충분한 기계적 특성인 519 MPa의 이축강도와 $4.5 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 의 파괴인성값이 관찰되었다. 알루미나 입도 분포가 single size인 0.5 μm 보다 bimodal size 분포를 가진 3.0 μm 가 충전(compaction)에 효과적이었다. 0.5 μm 과 3.0 μm 알루미나 분말로 제조한 전성형체의 기공 크기는 각각 0.08 μm , 0.44 μm 로 유리 침투능력(penetration rate) 차이가 복합체의 치밀화와 기계적 특성의 차이를 유발시켰다. 알루미나 입자 크기가 0.5 μm 에서 3.0 μm 로 증가할수록 균열선단의 성장이 알루미나 입자 크기에 의한 crack pinning에 의하여 억제되어 인성증진이 발생한 것으로 추정된다. 본 연구에서는 입도 분포가 bimodal이면서 random orientation을 가진 3.0 μm 알루미나 분말을 die-pressing법으로 제조한 유리-알루미나 복합체가 최적의 조건으로 관찰되었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구(과제번호: 2000-1-30100-011-3) 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. S. O. Hondrum, "A Reviews of the Strength Properties of Dental Ceramics," *J. Prosthet. Dent.*, **67**(6), 859-865 (1992).
2. W. D. Wolf, "Strength and Fracture Toughness of Alumina-glass Dental Composites Prepared by Melt-infiltration," Ph.D. Dissertation, University of Minnesota, 1995.
3. H. Hornberger, "Strength Microstructure Relationships in a Dental Alumina Glass Composite," Ph.D. Dissertaion, University of Birmingham, 1995.
4. D-J. Kim, M-H. Lee and C-E. Kim, "Mechanical Properties of Tape Cast Alumina-glass Dental Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, **82**(11), 3167-3172 (1999).
5. T. Sohmura and J. Takahashi, "Use of CAD/CAM System to Fabricate Dental Prostheses. Part 1: CAD for a Clinical Crown Restoration," *Int. J. Prosthodontics*, **8**(3), 252-258 (1995).
6. J. Gauckler, F. Filser, P. Kocher, H. Luthy, P. Scharer and A. Feher, "High Strength, High Reliable All-ceramic Dental Bridges," Intl. Sym. Advanced Materials with Biomedical Applications, June 7-8, 1999, Gaithersburg, MD, USA.
7. Standard Test-method for Biaxial Flexure Strength (Modulus of Rupture) of Ceramic Substrates, ASTM Designation F 394-78, Annual book of ASTM Standards Vol. 15.02, Section 15, 446-450. American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, 1996.
8. Internation Standard of Implants for Surgery - Ceramic Materials Based on High Purity Alumina, ISO 6474:1994

- (E), Geneve, Switzerland.
9. P. Chantikul, G. R. Anstis, B. R. Lawn and D. B. Marshall, "Critical Evaluation of Indentation Techniques for Measuring Fracture Toughness: II. Strength Method," *J. Am. Ceram. Soc.*, **64**(9), 539-543 (1981).
 10. D. Y. Lee, J-W. Jang and D-J. Kim, "Raman Spectral Characterization of Existing Phases in the ZrO_2 - Y_2O_3 - Nb_2O_5 System," *Ceram. Int.*, **27**(3), 291-298 (2001).
 11. D. Y. Lee, D-J. Kim, M-H. Lee and J-W. Jang, "Flaw Tolerance of (Y, Nb)-TZP/ Al_2O_3 Composites," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38**(1), 56-60 (2001)
 12. M-H. Lee, I-S. Park, D-J. Kim and D. Y. Lee, "Effect of Organic Additive Composition on Isostatic Thermocompression Behavior of Alumina Tapes," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37**(8), 824-831 (2000).
 13. E. O. Einser, "Capillary Infiltration Rates into Porous Media with Applications to Silcomp Processing," *J. Am. Ceram. Soc.*, **79**(2), 333-338 (1996).
 14. D. J. Shanefield, Organic Additives and Ceramic Processing, 2nd ed. Kluwer Academic Publishers, Massachusetts, p.115 (1999).
 15. R. F. Cook and G. M. Pharr, "Mechanical Properties of Ceramics," 339-407 in Materials Science and Technology, Vol. 11, Structure and Properties of Ceramics, Edited by M. Swain. VCH Publishers Inc., New York, NY, 1994.
 16. M-H. Lee, D-J. Kim, D. Y. Lee J-H. Lee and C-E. Kim, "Mechanical Properties of Alumina-glass Dental Composites Prepared from Aqueous-based Tape Casting," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **36**(12), 1123-1131 (1999).
 17. F. F. Lange, "Fracture Energy and Strength Behavior of a Sodium Borosilicate Glass- Al_2O_3 Composite System," *J. Am. Ceram. Soc.*, **54**(12), 614-619 (1971).
 18. D. P. H. Hasselman and R. M. Fulrath, "Proposed Fracture Theory of a Dispersion-strengthened Glass Matrix," *J. Am. Ceram. Soc.*, **49**(2), 68-72 (1966).
 19. F. F. Lange, "The Interaction of a Crack Front with a Second-phase Dispersion," *Philos. Mag.*, **22**(179), 983-992 (1970).
 20. R. W. Rice, "Toughening in Ceramic Particulate and Whisker Composites," *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, **11**(7-8), 667-694 (1990).
 21. Y. Kuromitsu, H. Yoshida, H. Takebe and K. Morinaga, "Interaction between Alumina and Binary Glasses," *J. Am. Ceram. Soc.*, **80**(6), 1583-1587 (1997).