Property of MgO with Different Sintering Temperatures under High Pressures

Jeongho Song, Yunyoung Noh, and Ohsung Song[†]

Department of Materials Science and Engineering, University of Seoul, Seoul 130-743, Korea

(Received August 7, 2012; Revised August 30, 2012; Accepted September 7, 2012)

고압 환경에서 소결 온도에 따른 MgO 물성의 변화

송정호 · 노윤영 · 송오성[†]

서울시립대학교 신소재공학과

(2012년 8월 7일 접수 ; 2012년 8월 30일 수정 ; 2012년 9월 7일 채택)

ABSTRACT

We investigated the property changes of MgO powders sintered at temperatures ranging from 700°C to 1900°C for 5 minutes at a pressure of 2.7 GPa for a high-pressure high-temperature (HPHT) diamond synthesis process. The physical properties of the sintered MgO powders were characterized by optical microscopy, field emission scanning electron microscopy (FE-SEM), Vickers hardness tests, and by the apparent density, and X-ray diffractometry. An optical micro-analysis showed that white MgO powders became black after sintering due to carbon contamination from the graphite heat source. FE-SEM revealed the growth in the grain size of the MgO powders from 0.3 μm to 50 μm after sintering at 1700°C. The hardness and apparent density increased to 1800°C while the samples were dedensified at 1900°C due to the growth of isolated pores. According to the XRD analysis, no phase transformation occurred in the MgO powders. These results suggest that HPHT-sintered MgO powders can show an accelerated sintering process characterized by grain neck growth, pore connections, isolated pore growth and dedensification in 5 minutes, while these processes with the conventional sintering process take at least 5 hours.

Key words : MgO, HPHT sintering, XRD, Vickers hardness, Dedensification

1. 서 론

MgO는 NaCl 구조의 세라믹으로 5개 이상의 독립적인 슬립시스템을 가져 고온에서도 내화물로 우수한 변형특성을 가지는 전통적인 구조재료이다. 최근에는 초고압에서도 슬립시스템을 띠고 융점이 2850°C로 높아 우수한 변형특성을 지니고 있기 때문에 다이아몬드 산업에서 고온 고압법으로 다이아몬드를 제조하는데 압력과 열 전달매체로써 활용되고 있다.¹⁾

다이아몬드는 흑연이 고온고압 환경에서 상변화를 일으켜 결정질의 다이아몬드로 변화하는 것으로, 약 5.6 GPa와 2000°C 정도의 압력과 온도의 조건이 필요하며, 이때 고압상태에서 파괴 없이 적절한 소성변형이 일어나야 하고 2000°C에서도 열충격이나 상변화에 의한 부피의 변화 없이 안정적인 열전달이 가능해야 한다. 기존에는 압력과 열 전달매체로서 엽납석(pyrophyllite)을 이용하여 엽납석

특유의 압력에 대한 우수한 윤활성, 기밀성을 이용한 개스킷(gasket) 재료로 활용하였으나 최근 천연 엽납석의 공급 제한과 100시간 이상의 고온고압을 유지하는 안정성을 위한 내열재료 MgO와 같은 새로운 전달매체가 필요한 실정이다.

이러한 고온고압 다이아몬드 제조를 위한 압력과 열전달 매체로서 MgO는 NaCl 구조를 가지므로 많은 독립적인 슬립시스템을 가져 고압상태에서 적절한 변형이 가능하여 앤빌 사이의 틈을 막아주는 개스킷 역할의 수행이 가능하고, 항복응력 이상의 압력에는 국부적인 입계파괴가 진행되며 압력을 효율적으로 전달할 수 있다.²⁾ 또한 MgO의 강도를 높이기 위해서 ZrO₂ 또는 TiO₂를 고용시켜 비교적 낮은 소결온도인 1500°C에서 성공적인 치밀화와 곡강도의 증가를 확인한 연구가 이미 보고되어 고압력 전달 매체로서의 응용 가능성이 높다.^{3,4)}

현재는 전체 MgO 생산량의 반 이상이 고온 내화재료 사용되고 있고 다이아몬드 산업에서도 일부 사용되어 초고압에서도 압력전달이 유지되는 특성이 있다고 예상되나 아직 이러한 고온 초고압 상태에서의 미세구조 변화와 정량적인 기계적 물성은 보고되지 못하였다. 그 이유

[†]Corresponding author : Ohsung Song

E-mail : songos@uos.ac.kr

Tel : +82-2-2210-2978 Fax : +82-2-2215-5863

는 비교적 최근에서야 다이아몬드 제조에 적합한 10GPa, 2000°C 정도의 고온고압 환경을 구현할 수 있는 양산용 육방정 멀티앤빌 프레스 장비가 개발되었기 때문이다. 이러한 멀티앤빌형 프레스는 비교적 쉽게 5.6GPa 이상의 압력을 얻을 수 있으며 탄소 발열체를 이용하여 ~2000°C 정도의 안정적인 고온 상태 유지가 장시간 가능하다. 이때 다이아몬드 성장 셀에 효과적으로 고압과 고온을 전달할 수 있는 매체가 필요한데 MgO는 특유의 고온 슬립 시스템이 발달하여 압력전달 공정 중 파괴를 방지하고, 효과적인 내열성으로 2000°C의 고온에서도 열전달을 수행하면서 동시에 절연효과를 담당할 수 있음이 실험적으로 밝혀졌다. 실제로 파이로필라이트 개스킷의 중심부에 800°C에서 전소결된 MgO 소결체 내부에 다이아몬드를 위치시켜 5.6GPa/ 1600°C 이상의 조건으로 고온고압 처리된 실례가 있으나⁵⁾ 이러한 GPa 정도의 초고압 환경에서의 소결에 따른 미세구조와 물성변화는 아직 연구가 미흡하다.⁶⁾

MgO를 실제로 압력전달 매체로 활용한 예는 이미 지구과학 분야에서 140 GPa 이상의 압력을 전달할 수 있는 매체로 성공적으로 적용한 바가 있으나 장시간 초고압 상태가 유지된 상황에서의 보고는 없다.⁷⁾ 한편 이러한 MgO를 전달매체로 활용하기 위해서는 초고압환경에서 입도 크기에 의한 소결특성도 확인될 필요가 있다.^{8,9)} 실제 다이아몬드 제조공정에서는 5.6 GPa 정도의 초고압에서 천연 다이아몬드의 색처리를 하는 경우로써 10분 이내의 짧은 시간동안 1800°C 정도로 유지되는 경우와 직접 대구경의 다이아몬드를 성장시키기 위해 96시간 이상의 긴 시간 동안 1500°C 정도로 유지되는 경우 등 다양한 상황의 고온고압 환경이 필요하므로 여러 상황에서의 압력전달 매체의 특성이 확인되어야 하기 때문이다.

본 연구에서는 고온고압에서 0.3 μm 급 크기의 MgO 분말을 사용하여 2.7 GPa에서 700~1900°C까지 소결온도를 바꾸며 각각 5분간 소결 시 MgO 소결체의 미세구조와 물성변화를 확인하고 압력과 열 전달매체로서의 가능성을 확인하였다.

2. 실험방법

먼저 MgO의 강도증가를 위해 MgO-바인더의 혼합물을 만들고 75 μm 급 체(sieve)로 거른 후 고온고압 장비에 사용되는 셀에 장착시키기 위해 원기둥형(14.40 ϕ × 8.70 mm) 모양의 성형을 진행하였다. 만들어진 성형체를 고온고압 처리 전 진공분위기 내에서 5°C/min으로 승온시킨 후 5 시간 동안 800°C로 유지, 가열하여 전소결(pre-sintering)을 진행하였다. 고온고압 환경은 육면체에 수직으로 여섯 방향으로부터 가압하게 되고 셀이 외부 대기와 차단되는데, 이때 수 초 내에 고온고압이 가해지고 단순 프레스링 한 MgO

성형체가 수분 및 기공을 포함할 경우 셀이 폭발할 위험성이 있다. 이를 예방하기 위해 전소결은 MgO 성형체 내의 수분을 완전히 제거하고 압력을 부분 파괴 없이 시편까지 전달하기 위해 시행하였다.

MgO 소결체의 고온고압 처리를 위해 큐빅프레스(Guilin사 420 ϕ 모델)를 사용하였다. 큐빅프레스 장비는 6개의 초경앤빌에 유압을 인가하여 6방향에서 중심부의 MgO 시료에 정수압의 균일한 압력을 가한다.

Fig. 1과 같이 파이로필라이트 개스킷에 Mo 디스크 전극체와 흑연 튜브 발열체 등과 함께 중심부에 MgO 실린더(성형체)를 위치시킨 후 압력과 시간을 각각 2.7GPa, 5분으로 고정하고 이때 흑연 튜브 발열체에 의한 온도를 700~1900°C까지 변화시키면서 고온고압 공정실험을 진행하였다.

고온고압 처리 후 소결온도에 따른 MgO 소결체의 외형을 관찰하기 위해 매크로 사진기를 이용하여 확인하였다. 또한 같은 압력 하에서 온도별로 고온고압 처리된 MgO의 표면 확인을 위해 각 시편을 마운팅하고 에탄올 슬러리로 폴리싱을 한 후 광학현미경을 이용해 100배율로 확대하여 관찰하였다.

또한 온도별로 소결처리된 MgO 소결체의 파단면 미세구조 확인을 위해 FE-SEM(field emission scanning electron microscope, Hitachi사, S-4800)를 이용하여, 10KV의 가속전압을 사용하여 각각 500배, 1000배율로 확대하여 관찰하였다. 이때 입도의 크기는 각 FE-SEM 이미지에 임의로 같은 길이의 직선 10개를 만들어 하나에 직선에 해당하는 입도 개수의 평균값을 구하여 판단하였다.

미세경도기(micro hardness tester, Mitutoyo사, MVK-H1)를 이용하여 소결 온도별로 처리된 MgO 시편의 비커스 경도값 측정을 하였다. 1Kg의 기준 하중을 가하면서 한 시편 당 5회의 측정 후 평균값으로 경도값을 결정하였다.

소결조건에 따라 MgO 소결체의 겉보기밀도를 측정하

Fig. 1. Tube type cell structure.

Fig. 2. Macro images of mounted MgO ; from the left to right, reference, 2.7GPa/ 700°C/ 5min, 2.7GPa/ 1000°C/ 5min, and 2.7GPa/ 1600°C/ 5min.

였다. MgO는 H₂O와 반응하여 Mg(OH)₂로 반응을 하기 때문에 식(1)을 사용하여 각 온도에서 소결된 혼합물을 에탄올을 사용하여 겔보기밀도(D)를 측정하였다.¹⁰⁾ 여기서 W₀는 공기 중에서의 빈 무게 이고 W₁은 공기 중에서

시편의 무게, W₂은 액체 내에서의 시편무게, W₃는 액체 내에서의 빈 무게이다. D_A는 공기의 밀도, D_L은 액체의 밀도를 나타내며, 공기의 밀도는 20°C의 상온으로 가정하여 0.0012 g/cc, 액체의 밀도는 에탄올을 사용하여 0.788 g/cc로 각각 계산하였고, MgO의 이론밀도인 3.58 g/cc를 100%로 하여 소결조건에 따른 각 소결체의 겔보기밀도 변화를 나타내었다.

$$D = \left[\frac{W_1 - W_0}{(W_3 - W_0) - (W_2 - W_1)} \right] (D_L - D_A) + D_A \quad (1)$$

온도에 따른 MgO의 상변화를 알아보기 위해 XRD(Rigaku 사, DMAX-III A) 분석을 실시하였다. 분석을 위해 샘플장

Fig. 3. FE-SEM images of MgO powders: (a) before pre-sintering, (b) after HPHT processed at 2.7GPa/ 700°C/ 5min, (c) 2.7GPa/ 1200°C/ 5min, (d) 2.7GPa/ 1600°C/ 5min, (e) 2.7GPa/ 1700°C/ 5min, and (f) 2.7GPa/ 1900°C/ 5min.

입부에 고온고압 처리된 MgO 시편을 각각 지름 8 mm, 두께 2 mm로 성형을 하여 장착하였다. 20값을 30-120도 범위에서 증가 값을 0.05/sec로 설정하여 각각 스캔하여 상변화를 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 마운팅 되어있는 MgO의 매크로 이미지이다. 왼쪽부터 소결처리 전의 성형체 reference, 700°C/ 2.7GPa/ 5min, 1000°C/ 2.7GPa/ 5min, 1600°C/ 2.7GPa/ 5min 성형체 시편이다. Reference는 MgO-바인더 혼합물에 대해 800°C의 진공분위기에서 5시간 전소결 한 시편으로서 MgO 본래의 흰색을 띄고 있다. 그러나 나머지 시편은 사진과 같이 고온고압 처리 후 모두 검은색으로 변한 것을 알 수 있다.

Zhang 등⁹⁾은 MgO-C 내화물에 여러 가지 Al, Si, Mg 등 금속과 B₄C, SiC 등 탄화물(carbides) 및 CaB₆, ZrB₂ 등 보론화합물(boron compounds)이 혼합된 경우 여러 열역학적인 반응 안정성과 실험적인 미세구조 확인을 통하여 MgO 기지결정립계에 흑연(graphite)이 플레이크(flakes) 형태로 형성할 수 있음을 보였는데 이러한 기구를 통하여, 우리의 MgO 소결체도 소결진행에 따라 C의 확산에 의해 통상 하얀색의 소결체가 진회색으로 변화하였음을 예상할 수 있다. 온도가 증가하면서 오히려 진회색이 계속 진행되지 않고 명도가 낮아지는 것은 1200°C 이상에서는 MgO의 산소와 반응하여 오히려 CO(g)로 제거되거나 결정립 내부로 고용도가 높아지기 때문이라고 판단되었다. 따라서 Fig. 1과 같이 고온을 위한 열원으로 흑연 발열체에 MgO 매체가 접촉되어 소결되는 경우 탄소 확산에 의해 MgO의 색이 검게 진행된 것으로 판단된다.

Fig. 3은 온도별로 처리된 MgO 소결체의 파단면 FE-SEM 이미지이다. (a)는 소결처리 되지 않은 실험에 사용된 MgO 분말의 모습으로, 이미지 면적 내에 0.1~0.5 μm의 과립형 입자가 고르게 분포되어 있었으며 이중 평균적으로 0.1 μm과 0.4 μm의 MgO 입자가 가장 많았다. 따라서 처리되기 전 MgO는 육면체 형상으로 평균 약 0.3 μm 정도의 입도크기를 보였다.

(b)는 2.7GPa/ 700°C/ 5min의 조건으로 고온고압처리된 MgO를 10K배로 확대한 이미지이다. 고온고압 처리로 인해 표면부가 얇은 판 모양으로 형성되어 있으며 입도크기는 약 0.6 μm으로 처리되지 않은 (a)에 비해 두 배 정도 증가한 것을 확인하였다. 따라서 접촉한 입자끼리 입자목 소결이 진행되면서 초기 소결이 진행된 것으로 판단된다.

(c)는 2.7 GPa/ 1200°C/ 5min의 조건으로 고온고압 처리된 MgO를 2K배로 확대한 이미지이다. 입도의 크기는 약 5 μm으로 (b)에 비해 8배 이상 증가하였으며 입자 확산에 의한 소결이 진행되었다. 또한 표면이 고르고 크랙이 발

생하기 시작하였다. 이러한 미세 크랙은 오히려 초고압상태에서의 입계파괴가 진행되어 전체 시스템을 막아주는 MgO의 압력전달매체로서의 특성을 나타내고 있다.

(d)는 2.7 GPa/ 1600°C/ 5min에서 고온고압 처리된 MgO의 이미지이다. 입도크기가 약 35 μm 이상으로 급격하게 증가하였고 크랙이 다량 생성된 것을 확인할 수 있었다. 이는 고온고압 처리 시 MgO에 크랙이 생성되어 효과적으로 압력전달이 가능하다는 것을 알 수 있었다.

(e)는 2.7 GPa/ 1700°C/ 5min의 조건으로 고온고압 처리된 MgO를 300배 확대한 이미지로 입도크기는 50 μm 이상이며 입자는 균일한 모양을 나타내었고, 표면부 곳곳에 크랙이 형성된 것을 확인할 수 있었다.

(f)는 2.7 GPa/ 1900°C/ 5min에서 고온고압 처리된 MgO를 300배 확대한 이미지로 입도크기는 약 60 μm으로 (e)에 비해 크게 증가하지 않았으며, 불균일한 입자 형태를 나타내었다. 이러한 소결현상은 일반적인 고상소결의 입자사이에 목이 성장하는 단계, 입자 사이의 기공들이 연결되는 중간단계와 모든 기공이 고립화하는 말기단계로 나눌 수 있다는 Coble model과 잘 일치하고 있다.¹¹⁾ Ehre 등⁸⁾은 10 nm급 MgO 나노분말을 hot pressing을 써서 700~800°C로 240분까지 100~200MPa로 압력을 주면서 소결 처리한 경우 99.5%의 소결밀도가 790°C-150 MPa-30분 조건에서 얻어지고, 크립 거동은 입계를 통한 물질 이동에 의한 Coble creep과 일치함을 보고한 바 있다. 따라서 우리는 나노급 분말은 아니지만 비슷한 메카니즘으로 더욱 큰 ~GPa 압력 환경에서 5분의 소결처리로 입계를 통한 가속 확산에 의해 미세구조가 변화함을 확인할 수 있었다.

Fig. 4는 Fig. 3의 FE-SEM 이미지로부터 판단한 각 소결 온도별로 MgO 소결체의 입도크기를 나타낸 그래프이다. 1000°C까지 고온고압 처리된 MgO의 소결체는 모두 1 μm 미만으로 입도크기의 변화가 크게 없는 것을 확인할 수 있었다. 1200°C이후부터 5 μm, 1600°C에서 35 μm으로 1200°C이후부터 급격하게 입도크기가 커지고 1900°C

Fig. 4. Grain size of MgO with sintering temperature.

Fig. 5. Vickers hardness of MgO with sintering temperature.

에서는 약 $60\ \mu\text{m}$ 으로 초고압의 조건하에서는 단 5분 만에 약 20배 이상 입도 크기가 커지는 것을 확인하였다. 일반적으로 고체재료에서 외부 압력이 증가하면 주어진 온도에서 공공과 같은 점결함을 비롯하여 전위, 적층결함이 증가하게 된다. 열역학적으로는 MgO의 반응식을 고려하여 반응평형상수 $K(T)$ 는, $K(T) = [V_{\text{Mg}}][h^{\bullet}]^2/P_{\text{O}_2}^{1/2}$ 로 주어지는데, 외부압력에 의한 내부 P_{O_2} 가 증가하면 $[V_{\text{Mg}}]$, $[h^{\bullet}]$ 도 증가하게 된다. 따라서 MgO의 공공이 증가하게 되고 이러한 공공의 증가는 Mg 이온의 확산을 촉진시켜 단시간에 결정립 성장이 가능하다고 예상되었다.⁴⁾

Fig. 5는 소결온도에 따른 MgO 소결체의 비커스 경도값을 나타낸 그래프이다. MgO 분말을 800°C 에서 5시간 동안 전소결 처리된 기준시편은 비커스 경도가 30.6으로 매우 약한 것을 알 수 있다. 이후 고온고압 처리가 된 후 급격하게 경도값이 증가하여 700°C 에서 고온고압 처리된 MgO 소결체는 689.7로 고온고압 처리되지 않은 소결체에 비해 급격히 증가하였다. 이후 1800°C 의 조건으로 고온고압 처리된 MgO까지 경도값이 계속해서 증가하다 1900°C 부터 반대로 떨어지는 것을 확인 할 수 있었다. 이는 앞서 보인 MgO 소결체의 미세구조에서 나타난 과치밀화(densification)에 의한 현상 때문이라고 판단되었다. 이는 유리-알루미나 복합체에서 일정 온도이상에서 소결시 고립기공의 성장으로 밀도저하가 발생되는 것과 같은 경향을 보인다.¹²⁾ 그러나 다이아몬드 합성과 같이 장시간 초고압고온상태를 유지하는 경우 내부의 이러한 과치밀화 현상은 인가 압력을 증가시켜 보정이 가능하므로 압력전달매체로서의 기능에는 영향을 주지 않을 것이 예상되었다.

Fig. 6은 온도별로 처리된 MgO 소결체의 상대밀도 변화를 나타낸 그래프이다. 700°C 에서 92.3%의 밀도를 나타냈고 1000°C 에서 93.1%로 비슷한 밀도를 보이다 1200°C 이후 점진적으로 증가하였다. 1800°C 에서 99.9%로 가장 큰 밀도값을 보인 후 1900°C 에서는 92.0%로 오히려 감소한

Fig. 6. Relative density of MgO with sintering temperature.

Fig. 7. XRD patterns of HPHT sintered MgO powder.

것을 확인하였다. 이는 비커스 경도값의 변화와 마찬가지로 과치밀화 현상으로 MgO 소결체의 밀도도 감소한 것을 확인할 수 있었다.

Fig. 7은 2.7 GPa 조건에서 800°C , 1600°C , 1900°C 에서 각각 5분씩 고온고압처리된 MgO와 압력처리 전에 800°C 에서 전소결된 MgO의 XRD 그래프이다. 압력과 열처리 조건의 변화와 상관없이 4개의 그래프 모두 42.908° , 62.281° , 78.595° , 109.695° 에 상응한 (200), (220), (222), (420)면을 확인 할 수 있었다. 따라서 고온고압 처리로 인한 MgO의 상변화는 없는 것을 확인 할 수 있었다. 이는 Belonoshko¹³⁾ 등이 보고한 바와 같이 MgO의 고상변태에 의한 B2상으로의 상변화가 있으려면 수천K(Kelvin)에서 400 GPa 정도의 압력이 필요하다는 예측과 일치하게 우리의 실험 범위 내에서는 매우 안정하게 MgO 상이 유지됨을 알 수 있었다.

4. 결 론

$0.3\ \mu\text{m}$ 크기의 MgO 분말을 2.7 GPa의 초고압하에서 5분

간 소결온도를 700 ~ 1900°C로 달리하여 소결을 진행하였다. MgO 소결체는 발열체로 사용된 C의 확산에 의해 소결처리 된 MgO 표면부가 검은색으로 바뀐 후 1200°C 이후 산소와 반응하여 진회색으로 바뀌는 특성을 보였다. FE-SEM 분석 결과 1000°C까지 입도크기에 큰 변화가 없다가 1200°C 이후 입도 크기가 급격하게 증가하여 1900°C에서 소결처리 전에 비해 200배 이상 증가하였다. 비커스 경도와 밀도 측정 결과 소결 후 1800°C까지 계속해서 증가한 후 1900°C부터 과치밀화 현상에 의해 반대로 감소하는 것을 확인하였다. 이는 MgO가 초고온고압 환경에서 우수한 압력과 열전달 매체로 적합함을 알 수 있었다.

Acknowledgment

이 논문은 2012년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 기초연구사업 지원을 받아 수행된 연구임(2012-0002601).

REFERENCES

1. R. W. Davidge, "Mechanical Behaviour of Ceramics," pp. 71-92, Cambridge University Press, Cambridge, 1980.
2. R. M. Fulrath and J. A. Pask, "Effect of Microstructure on Deformation of Ceramics. In Ceramic Microstructures," pp. 406, Wiley Publishing, New York, 1968.
3. Y. B. Lee, J. H. Lee, H. C. Park, and K. D. Oh, "Influence of ZrO₂ on Microstructure and Mechanical Strength of Sintered Magnesia," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **31** [9] 1053-59 (1994).
4. Y. B. Lee, H. C. Park, and K. D. Oh, "Influence of TiO₂ on Sintering and Microstructure of Magnesia," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **31** [5] 471-76 (1994).
5. J. H. Song and O. S. Song, "Color Enhancement of the Type II and Type I aB Brown Diamonds into Colorless by HPHT Process," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **49** [3] 221-25 (2012).
6. S. Zhang, N. J. Marriott, and W. E. Lee, "Thermochemistry and Microstructures of MgO-C Refractories Containing Various Antioxidants," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21** 1037-47 (2001).
7. Y. Kono, T. Irifune, Y. Higo, T. Inoue, and A. Barnhoorn, "P-V-T Relation of MgO Derived by Simultaneous Elastic Wave Velocity and in Situ X-ray Measurements: A New Pressure Scale for the Mantle Transition Region," *Phys. Earth Planetary Inter.*, **183** [1-2] 196-211 (2010).
8. D. Ehre, E. Y. Gutmanas, and R. Chaim, "Densification of Nanocrystalline MgO Ceramics by Hot-pressing," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **25** [16] 3579-85 (2005).
9. A. G. Evans and R. W. Davidge, "The Strength and Fracture of Fully Dense Polycrystalline Magnesium Oxide," *Philos. Mag.*, **20** [164] 373-88 (1969).
10. James S. Reed, "Principles of Ceramics Processing : Second edition," pp. 118-21, John Wiley & Sons, INC., NY, 1995.
11. R. L. Coble, "Sintering Crystalline Solids, I. Intermediate and Final Diffusion Models," *J. Appl. Phys.*, **32** [5] 787-92 (1950).
12. D. H. Park, B. C. Kim, J. J. Kim, and L. S. Park, "Effects of Glass Particle Size on Sintering Behaviors of the Glass-Alumina Composites for Low Firing Temperature," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [6] 545-51 (2000).
13. A. B. Belonoshko, S. Arapan, R. Martonak, and A. Rosengren, "MgO Phase Diagram from First Principles in a Wide Pressure-Temperature Range," *Phys. Rev. B*, **81** 154110-1-8 (2010).