

알루미나 쌍결정에서 조성변화에 의한 Zigzag Migration

백용균 · 강석중

한국과학기술원 재료공학과

(1995년 7월 18일 접수)

Chemically Induced Zigzag Migration in Alumina Bicrystals

Yeong-Kyenn Paek and Suk-Joong L. Kang

Dept. of Mater. Sci. and Eng., Korea Advanced Institute of Sci. and Tech.

(Received July 18, 1995)

요 약

Zigzag 이동의 입자 구조 의존성을 연구하기 위하여 정합변형에너지의 크기가 비슷한 표면 배향이 $a(2\bar{1}\bar{1}0)$ 와 $m(10\bar{1}0)$ 인 알루미나 단결정으로 5종류의 쌍결정을 만들었다. 5종류의 쌍결정은 각각의 단결정 면에서 [0001] 방향을 일치시킨 것에서부터 30° 간격으로 twist시킨 것들이었다. 준비된 쌍결정에 Cr_2O_3 를 기상으로 고용시키면 입자의 zigzag 이동이 일어났다. Twist angle에 따라 zigzag 이동 분율은 거의 변하지 않았으나 개개의 zigzag segment의 크기와 이동 거리는 달라졌다. 따라서 twist angle에 따른 입자 이동의 차이는 입자 방위의 미시적 변화에 의한 입자 이동도의 변화가 그 원인으로 생각된다.

ABSTRACT

The effect of grain boundary structure on zigzag migration has been studied. Five kinds of $a(2\bar{1}\bar{1}0)$ - $m(10\bar{1}0)$ diffusion couples with different twist angles by 30° from a [0001] common direction of each plane were prepared. When chromia (Cr_2O_3) was added to the diffusion couples by a vapor phase, zigzag migration of the grain boundary occurred. The fraction of zigzag migration did not essentially vary with the twist angle, but the magnitude and migration distance of individual migrating segment varied. The variation of CIGM morphology thus appears to result from the change in grain boundary mobility due to microscopic deviation of grain boundary structure out of a macroscopic grain boundary orientation.

Key words: *Alumina, Chromia, Grain-boundary migration, Zigzag migration, Twist boundary*

1. 서 론

조성변화에 의하여 계면이동(chemically induced interface migration : CIIM)*이 일어나는 재료에 있어서, 최종적인 미세조직은 대개 계면의 초기 이동 방향에 의해 결정되기 때문에 계면의 초기 이동을 결정하는 인자에 대한 연구가 계면이동 현상 연구에 있어서 주된 관심

증의 하나가 되고 있다. Cahn 등¹⁾은 CIIM의 정합변형 이론을 근거로 해서, 액상박막 이동(LFM)의 초기 단계에서 용질 원자가 액상박막을 통해서 액상박막과 인접한 두 모상 입자로 확산해 들어가면 모상 입자와 정합성을 갖는 얇은 확산층이 생겨나고, 액상박막은 정합변형에너지가 큰 입자 쪽으로 이동하게 된다고 제안하고 있다. 이들의 제안에 의하면 액상박막 이동 방향은 액상박막 양쪽의 확산 영역에서의 정합변형에너지 차이에 의해 결정된다. 그렇다면 입자를 경계로 양쪽의 확산 영역에서의 정합변형에너지가 같거나 거의 비슷한 경우에는는 입자의 이동(CIGM) 방향이 어떻게 결정될 것인가가 흥미롭다. 일반적으로 입자 이동은 입자의 이동도 뿐만 아니라 입자 이동의 구동력에 의존하며, 입자의 이동도는

*용질의 계면확산에 의한 계면이동은 넓은 의미로 chemically induced interface migration(CIIM)이라고 명명되고 있으며, 세분하여 입자가 이동하는 경우에는 chemically induced grain-boundary migration(CIGM), 두 입자 사이에 존재하는 액상(liquid film)이 이동하는 경우에는 liquid film migration(LFM)이라고 한다.

입계의 구조와 밀접한 관련이 있다^{2,3)}. 따라서 입계를 경계로 양 방향에서 입계 이동의 구동력인 정합변형에너지가 같거나 거의 비슷한 경우 입계 이동의 양상은 국부적인 입계 구조에 의해 결정될 것이다.

Chen과 King¹⁰, Schmelzle 등¹¹, Hay와 Evans⁹는 입계의 형태에 따른 CIGM의 모양(morphology)과 속도론(kinetics)에 대하여 체계적인 연구를 했다. Chen과 King, Schmelzle의 결과에 의하면 Cu의 쌍결정(bicrystal)에 Zn를 고용시킬 때 CIGM의 모양과 속도는 입계의 대칭성 정도와 coincidence site lattice(CSL) 정도(Σ)에 크게 의존한다. 일례로 대칭 소각 입계(symmetrical small angle grain boundary)에서는 CIGM이 일어나지 않는 반면, 비대칭 소각 입계(asymmetrical small angle grain boundary)에서는 CIGM이 일어난다. 또한 Hay와 Evans가 연구한 calcite 쌍결정에서도 Chen과 King, Schmelzle 등의 결과에서처럼 CIGM의 거동이 입계 구조에 민감함을 알 수 있다.

최근 Lee, Kang과 Yoon⁹은 입계 이동의 거동을 알아보기 위해 방향을 알고 있는 알루미나 단결정과 단결정의 여러가지 couple을 만들었다. 이들은 알루미나에 Fe_2O_3 와 Cr_2O_3 를 각각 고용시킬 때 정합변형에너지를 이론적으로 계산하고, 계산된 정합변형에너지에 근거해서 입계 이동의 방향에 대해 연구하였다. 그 결과에 의하면 정합변형에너지 차이가 큰 입자 사이의 입계는 정합변형에너지가 큰 입자 쪽으로 한 방향으로 이동했으나, 정합변형에너지가 비슷한 입자 사이의 입계에서는 zigzag 이동이 일어났다. 또한 동일한 방향이라도 용질의 종류에 따라 정합변형에너지는 달라지게 되고, 알루미나에 Fe_2O_3 보다 Cr_2O_3 를 고용시킬 때 zigzag 이동의 정도도 더 커졌다. 따라서 CIGM의 모양과 속도론은 특히 정합변형에너지가 비슷한 입자들 사이에서, 입계 구조에 강하게 의존함을 알 수 있다. 그러므로 거시적으로 동일한 입계라도 부분별로 서로 다른 방향으로 이동하게 되는 zigzag 이동의 원인에 대한 고찰은 CIGM에 있어서 입계의 초기 이동(migration initiation)에 대한 더욱 보편적인 이해를 도와 줄 것이다.

본 연구에서는 zigzag 이동의 입계 구조 의존성을 연구하기 위해 표면 배향이 a(2110)와 m(1010)의 알루미나 단결정으로 된 5종류의 쌍결정을 만들었다. Lee 등¹⁰의 정합변형에너지 계산 결과에 의하면 단결정 a와 m의 정합변형에너지 크기는 거의 비슷하나 a가 m보다 약간 크다. 준비된 쌍결정들은 grain boundary normal은 일정하고 두 입자 사이의 lattice misorientation만이 다르기 때문에 zigzag 이동의 미시적 입계 구조 의존성을

관찰하는데 매우 적합한 것으로 생각된다.

2. 실험방법

5종류의 쌍결정은 a(2110)의 prism plane(a-plane)과 (1010)의 second order prism plane(m-plane)으로 이루어져 있으며 입계는 비대칭 경각입계(asymmetrical tilt boundary)이다. 각 쌍결정의 종류는 a-lattice와 m-lattice 사이의 [0001] 방향을 일치시켰을 때 twist angle(θ)이 0° , 30° , 60° , 90° , 120° 로 이루어져 있다. Twist angle 0° 는 Fig. 1에서 보는 바와 같이 a-plane과 m-plane의 C [0001] 방향을 일치시킨 것($\Sigma=13$)이고¹¹, twist angle 90° 는 a-plane의 [0001]과 m-plane의 [1210]가 일치된 경우 즉, a-plane의 [0001]과 m-plane의 [1210]가 나란한 경우이다. 따라서 twist angle 30° 와 60° , 120° 는 a-plane의 [0001] 방향을 m-plane의 [0001] 방향에서 [1210] 방향으로 30° 간격으로 회전시키면 일어진다.

각각의 단결정 방향은 Laue back-reflection X-ray technique에 의해서 결정하였다. 각각의 방향이 결정된 단결정을 HF 용액과 aceton으로 세척한 후 a-m couple을 만들었다. a-m 접합이 이루어지도록 a-m couple을 알루미나 분말로 둘러싼 후 열간 가압 소결(hot pressing)로 확산접합시켰다. 확산접합을 위해서 1550°C 에서 15 MPa의 압력을 가해서 2시간 동안 열처리하였다. 기열과 냉각속도는 각각 $35\text{ K}/\text{min}$ 으로 하였다. 확산접합된 a-m 쌍결정(a-m bonded crystal)을 a-plane의 [0001] 방향에 수직으로 절단한 후 열간 가압 소결 동안의 탄소 오염

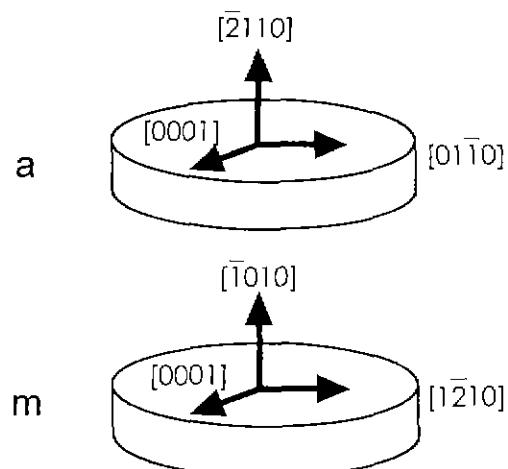


Fig. 1. Crystallography of alumina grain boundary manufactured in this study, $\Sigma=13$ tilt boundary¹⁰

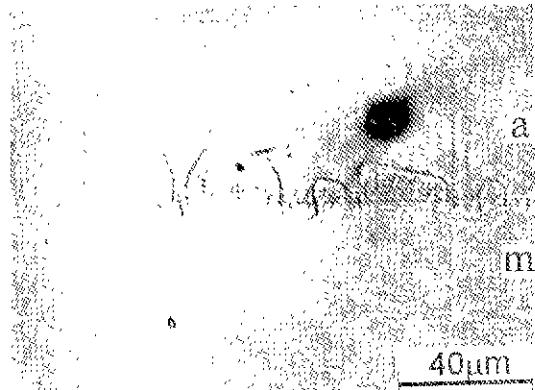


Fig. 2. Zigzag migration in a-m diffusion couple of $\Sigma=13$ tilt boundary after heat treatment at 1500°C for 10 h in a Cr₂O₃ containing atmosphere.

(carbon contamination)과 잔류 응력(residual stress)을 제거하기 위해 1550°C에서 2시간 동안 공기 중에서 열처리하였다. 열처리한 a-m 쌍결정을 diamond paste로 1 μm까지 연마하였다.

a-m 쌍결정에서 정합변형에너지에 의한 zigzag 입계 이동을 관찰하기 위해 Cr₂O₃를 기상(vapor)으로 고용시켰다. Cr₂O₃를 고용시키기 위해 Pt 도가니 내에 Al₂O₃-Cr₂O₃(20 wt%) 혼합 분말을 깔고 그 위에 직접 시편을 올려놓고, Pt 도가니의 뚜껑을 닫은 후 1500°C에서 10 시간 동안 열처리하였다. 이 방법은 Lee, Kang과 Yoon⁹의 방법과 동일하다. 열처리된 시편의 미세조직은 광학 현미경으로 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 결정면이 a와 m인 알루미나 단결정에 의해 [0001] 방향을 공통 방향으로 갖도록 형성된 a-m 입계에서 Cr₂O₃가 고용됨에 따라 입계 이동이 일어난 양상이다. 입계는 양 방향으로 zigzag로 이동했다. 이동한 입계들은 양 방향에서 모두 각진 면(faceted plane)이 잘 발달되어 나타났으며, 동일한 결정 내에서는 각진 면들이 각각 나란하게 나타나고 있다. 또한 양 방향의 이동 영역의 크기를 비교해 보면 a 방향으로의 이동 영역이 m 방향으로의 이동 영역에 비해서 더 크다. Cr₂O₃의 고용에 의해 입계 이동이 일어나면 Cr₂O₃가 고용된 부분 즉, 입계 이동 영역은 이동하는 입계 후방의 모상과 결정학적 방향이 같으므로^{12,13} 입계 이동 전의 원래 입계는 없어지게 된다. 그러나 Fig. 2에서 보는 바와 같이

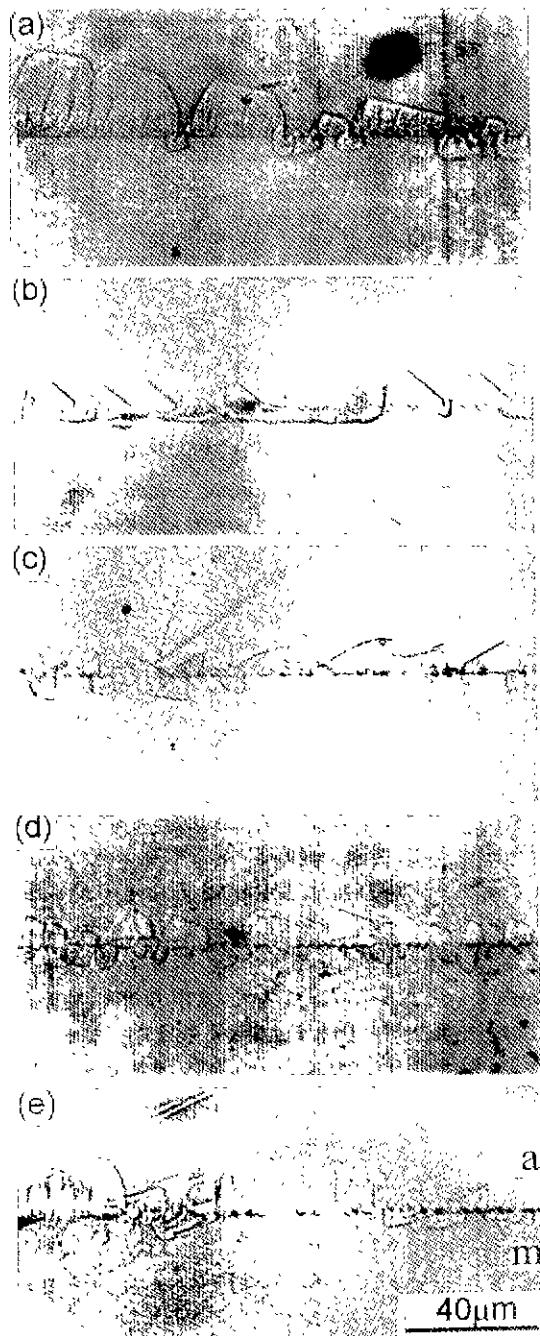


Fig. 3. Cross-sectional micrographs of a-m couples with different twist angle (θ) at 1500°C for 10 h in a Cr₂O₃ containing atmosphere: (a) $\theta=0^\circ$, (b) $\theta=30^\circ$, (c) $\theta=60^\circ$, (d) $\theta=90^\circ$, (e) $\theta=120^\circ$

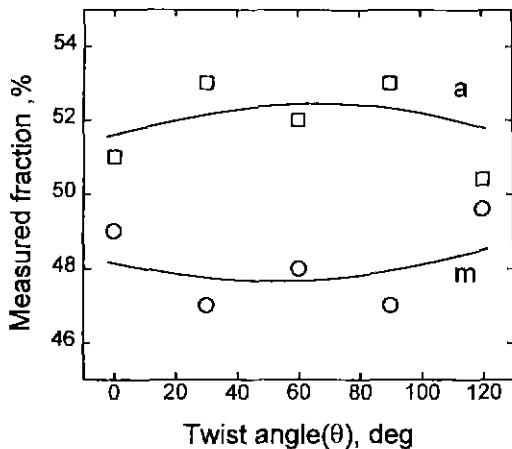


Fig. 4. Measured fractions of grain boundary migration directions with twist angle of a-m diffusion couples after heat treatment at 1500°C for 10 h.

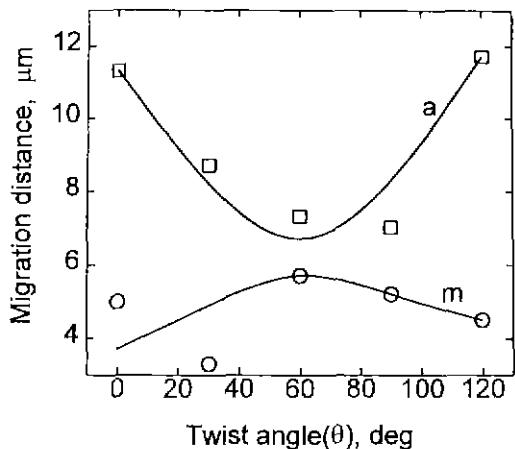


Fig. 5. Grain boundary migration distance to each plate of diffusion couples with twist angle after heat treatment at 1500°C for 10 h.

원래의 입계 위치의 궤적이 남아 있는 것은 열처리하는 동안 원래의 입계 위치에서 형성된 thermal groove 때문이다^[9].

Fig. 3은 [0001] 방향을 공통 방향으로 갖는 a-m 입계로부터 a-plane의 [0001] 방향을 30° 간격으로 회전시켰을 때 일어진 a-m 입계들의 CIGM 모양이다. 이들 사진에서 보면 twist angle에 따라 입계 이동 속도가 다름을 알 수 있다. 반면 동일한 결정 내에서 이동하는 입계는 평행 각집(parallel faceting) 관계가 항상 유지되고 있다. 이는 이전에도 관찰하였던 것처럼^[14,15] 입계 이동의 구동력이 수축하는 입자의 결정 방위에 의해 결정된다는 것을 의미한다. Fig. 3에서 관찰되는 입계 이동 거동의 다른 특징의 하나는 zigzag 이동 부분(segment)의 크기가 twist angle에 따라 다르다는 것이다. 즉, twist angle이 0°와 90°인 경우 zigzag 이동 부분 각각의 크기를 살펴보면, twist angle이 0°인 경우에는 segment와 segment 간의 간격이 큰 반면 twist angle이 90°인 경우에는 전자의 경우에 비해 그 간격이 매우 작다. 이는 zigzag 이동의 주기성(periodicity)^[16] twist angle에 따라 달라짐을 의미하는 것이다.

Fig. 4는 twist angle에 따라 zigzag 이동의 분율을 측정한 것이다. 분율은 각 plate 방향으로 이동한 segment의 개수를 기준으로 한 것이다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 zigzag 이동이 일어난 각 부분의 이동 분율은 m-plane 방향에서 보다 a-plane 방향에서 항상 크게 나타났다. 이는 계산된 정합변형에너지의 크기^[10]를 비교해 보면 a와 m이 거의 비슷하나 a가 m보다 약간 크기 때

문일 것이다. 또한, twist angle이 달라져도 각 plate 방향으로의 zigzag 이동 분율의 변화는 무시할 만하다. 만일 정합변형에너지가 twist angle에 의존한다면 twist angle에 따른 zigzag 이동 분율의 변화가 어느 정도 있어야 할 것이다. 이러한 사실로부터 정합변형에너지가 twist angle의 의존성이 거의 없는 것으로 판단된다. 물리적으로도 이상적인 계면인 경우, 정합변형에너지가 수축하는 입자의 결정면에만 의존하므로 입계의 twist angle의 의존성이 없는 것은 타당하다고 생각된다.

Fig. 5에서 보는 바와 같이 전체적인 입계 이동 거리는 m-plane 방향보다 a-plane 방향에서 더 크다. 이는 구동력인 정합변형에너지가 m-plane보다 a-plane에서 더 크다는 사실과 일치한다. 이때의 입계 이동 거리는 각 segment에서 원래 입계로부터 가장 멀리 이동한 부분까지의 거리를 평균해서 구했다. 입계 이동 거리는 입계 이동 속도에 비례하고, 입계 이동 속도는 입계 이동의 구동력과 입계 이동도의 곱으로 결정된다. Twist angle에 따른 구동력의 변화는 무시할 수 있으므로 Fig. 5에 나타난 twist angle에 따른 입계 이동 거리 즉, 입계 이동 속도의 변화 원인은 twist angle의 변화에 따른 입계 이동도의 변화가 그 원인일 것이다. 입계 이동도는 거시적으로 grain orientation과 boundary inclination에 의존하므로^[2] 입계 구조가 변하지 않는 한 입계 이동도는 일정할 것으로 여겨져 왔다. 그러나 Fig. 5의 결과를 보면 입계 이동도가 입계 구조의 미시적 변화에 의해 크게 달라질 수 있음을 나타낸다.

CIGM에 있어서 쌍결정을 이용한 입계의 이동 방향에

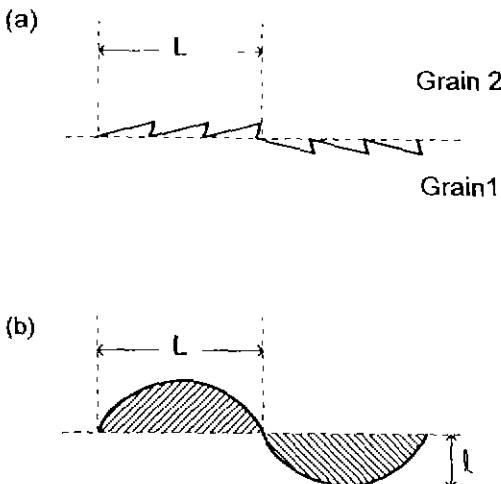


Fig. 6. Schematics illustrating (a) microscopic deviation of macroscopic boundary orientation and (b) zigzag migration caused by local boundary orientation change after CIGM. In (b), hatched areas are migrated regions after CIGM. L is the magnitude of a segment of zigzag migration and l the migration distance.

대한 연구⁴⁻⁸⁾에 의하면 CIGM의 이동 방향은 입계 형태에 의존한다. 즉, 비대칭 고각 입계(asymmetrical high angle grain boundary)는 일방향 이동이 일어난 반면 대칭 고각 입계(symmetrical high angle grain boundary)는 양 방향으로 zigzag 이동이 일어났다. 입계 이동의 구동력인 정합변형에너지 관점에서 보면 대칭 고각 입계는 정합변형에너지가 동일한 입자 사이의 입계에 해당하고 비대칭 고각 입계는 정합변형에너지의 크기 차이가 있는 두 입자 사이의 입계에 해당한다. 실제로 정합변형에너지의 크기를 알고 있는 알루미나 단결정을 이용한 Lee 등⁹⁾의 결과에 의하면, 정합변형에너지 크기 차이가 큰 두 입자 사이의 입계는 정합변형에너지가 큰 입자 방향으로 일방향 이동이 일어난 반면 정합변형에너지가 비슷한 두 입자 사이의 입계는 양 방향으로 zigzag로 이동했다.

아직까지 입계의 zigzag 이동의 원인은 잘 밝혀져 있지 않다. 최근에 Lee 등⁹⁾은 두 결정면의 정합변형에너지 차이가 작은 입계에서만 zigzag 이동이 일어난다는 사실로부터, 구동력이 정합변형에너지라는 관점에서 거시적으로 동일한 입계일지라도 입계 방위의 미시적 변화가 zigzag 이동의 원인일 것으로 제안하였다. 왜냐하면 입계의 형태가 거시적으로 잘 정의되어 있을지라도 원자

구조적인 측면에서는 다르기 때문이다. 그러므로 거시적으로 동일한 입계라도 정합변형에너지에는 부분적으로 변할 수 있다. 즉, 거시적으로 동일한 입계라도 미시적인 입계 방위 변화에 의한 정합변형에너지의 fluctuation이 일어날 수 있으며 이것이 zigzag 이동의 한 원인이 될 수 있다고 보았다.

Al_2O_3 에서 입계 구조를 연구한 Carter와 Morrissey¹⁰, Kim 등¹¹⁾의 연구 결과와 MgAl_2O_4 에서 입계 구조를 연구한 Carter¹¹⁾의 결과에 의하면 거시적으로 동일한 입계라도 국부적인 계면 방향은 계면의 평균 방향으로부터 미시적 편차가 있음을 알 수 있다. Fig. 6(a)는 Carter¹¹⁾, Carter와 Morrissey¹⁰, Kim 등¹¹⁾이 관찰한 거시적으로 동일한 입계의 미시적 입계 구조를, Fig. 6(b)는 (a)와 같은 미시적 입계구조를 갖는 입계의 zigzag 이동 양상을 보여주는 모식도이다. Fig. 6(a)에서 보는 바와 같이 국부적인 입계 면은 거시적 입계 면으로부터 약간의 편차를 보이고 있다. Fig. 6(a)에서 L은 동일한 입자 방향에서 국부적으로 편차가 있는 영역을 의미하며, 입계이동이 일어난 후에는 Fig. 6(b)에서처럼 zigzag migration의 segment의 크기에 해당한다. 결국 거시적으로 정합변형에너지의 크기가 동일한 입계라 하더라도 미시적으로는 정합변형에너지의 차이가 있기 때문에 입계는 zigzag로 이동할 것으로 생각된다. 그러나 미시적으로 존재하는 국부적인 편차가 열차리 후 거시적으로 관찰되는 zigzag 이동의 segment의 크기와 일치하지는 않을 것으로 생각된다. 이는 초기의 zigzag 이동의 빈도가 높다 하더라도 이동 중에 입계 장력(grain boundary tension)에 의하여 방향이 바뀔 수 있고, 또 여러개의 zigzag 이동이 하나로도 될 수 있을 것이기 때문이다.

4. 결 론

입계의 grain boundary normal이 고정되고 두 격자의 misorientation만이 서로 다른 $a(2\bar{1}\bar{1}0)$ 과 $m(10\bar{1}0)$ plane으로 입계를 만든 광결정에서 화학적 조성변화에 의한 입계의 zigzag 이동을 관찰하였다. Cr_2O_3 가 고용됨에 따라 입계는 항상 zigzag로 이동했다. 입계이동 후의 CIGM 모양은 각진 면이 잘 발달되어 있을 뿐만 아니라 이전의 연구^{12,13)}에서처럼 평행 각진 현상을 보였다. Twist angle에 따라 zigzag 이동 방향의 분율은 거의 변화가 없는 반면 zigzag 이동 영역의 각 segment의 크기(L)와 입계이동 거리(l)는 달랐다. 이 결과는 CIGM 속도가 정합변형에너지보다는 입계 이동도의 차이에 의하여 결정된다는 것을 의미한다. 한편 거시적으로 정합변형에

너지가 거의 비슷한 알루미나의 a-m 쌍결정에서 입체의 zigzag 이동이 관찰되었다고 하는 것은 입체 방위에 미시적 편차가 있었기 때문인 것으로 생각된다.

감사의 글

본 연구를 지원하여 준 재료계면공학연구센터(CISEM)에 감사드립니다.

REFERENCES

- D.N. Yoon, J.W. Cahn, C.A. Handwerker, J.E. Blendell, and Y.J. Baik, "Coherency Strain Induced Migration of Liquid Films Through Solids," in Interface Migration and Control of Microstructure, edited by C.S. Pande, D.A. Smith, A.H. King, J. Walter, pp. 19-31, Metals Park, Ohio, Am. Soc. Metals (1986).
- H. Gleiter and B. Chalmers, in High-Angle Grain Boundaries, pp. 127-78. Pergamon Press Ltd. (1972).
- D.A. Porter and K.E. Easterling, in Phase Transformations in Metals and Alloys, p. 136. Van Nostrand Reinhold Co. LTD. (1981).
- F.S. Chen and A.H. King, "The Misorientation Dependence of Diffusion Induced Grain Boundary Migration," *Scripta Metall.*, **20**, 1401-404 (1986).
- F.S. Chen and A.H. King, "Misorientation Effects upon Diffusion Induced Grain Boundary Migration in the Copper-Zinc System," *Acta Metall.*, **36**, 2827-39 (1988).
- F.S. Chen, G. Dixit, A.J. Aldykiewicz and A.H. King, "Bicrystal Studies of Diffusion-Induced Grain Boundary Migration in Cu/Zn," *Metal. Trans.*, **21A**, 2363 (1990).
- R. Schmelzle, B. Giakupian, T. Muschik, W. Gust and R.A. Fournelle, "Diffusion Induced Grain Boundary Migration of Symmetric and Asymmetric $\langle 011 \rangle \{011\}$ Tilt Boundaries During the Diffusion of Zn into Cu," *Acta Metall. Mater.*, **40**, 997-1007 (1992).
- R.S. Hay and B. Evans, "Chemically Induced Migration in Low and High Angle Calcite Grain Boundaries," *Acta Metall.*, **35**, 2049-62 (1987).
- H.Y. Lee, S.-J.L. Kang and D.Y. Yoon, "Coherency Strain Energy and the Direction of Chemically Induced Grain Boundary Migration in $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr}_2\text{O}_3$ and $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Fe}_2\text{O}_3$," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 1301-306 (1994).
- H.Y. Lee, and S.-J.L. Kang, "A General Equation of Coherency Strain Energy and Its Application," *Z. Metallkd.*, **85**, 426-31 (1994).
- C.B. Carter, " $\Sigma=99$ and $\Sigma=41$ Grain Boundaries," *Acta Metall.*, **36**, 2753-60 (1988).
- Y.S. Tsai, G. Meyrick, and P.G. Shewmon, "Surface Relief Produced by Diffusion Induced Boundary Migration in Cu-Zn," *Metal. Trans.*, **15A**, 495-99 (1984).
- D. Liu, W.A. Miller and K.T. Aust, "Diffusion Induced Grain Boundary Migration in Ni-Cu Diffusion Couples," *Acta Metall.*, **37**, 3367-78 (1989).
- H.Y. Lee, and S.-J.L. Kang, "Chemically Induced Grain Boundary Migration and Recrystallization in Al_2O_3 ," *Acta Metall. Mater.*, **38**, 1307-12 (1990).
- S.C. Han, D.Y. Yoon and K. Brun, "Migration of Grain Boundaries in Alumina Induced by Chromia Addition," *Acta Metall. Mater.*, **43**, 977-84 (1995).
- C.B. Carter and K.J. Morrissey, "Grain-Boundary Structure in Al_2O_3 ," in Structure and Properties of MgO and Al_2O_3 Ceramics, pp. 303-23, Advances in Ceramics, Vol. 10, Edited by Kingery, The American Ceramic Society, Inc. Columbus, Ohio.
- D.-Y. Kim, S.M. Wiederhorn, B.J. Hockey, C.A. Handwerker, and J.E. Blendell, "Stability and Surface Energies of Wetted Grain Boundaries in Aluminum Oxide," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 444-53 (1994).