

## Melt Properties of Plasma Display Panel Substrate Glasses Based on Float Process

Ki-Dong Kim,<sup>†</sup> Woo-Man Jung, Hyun-Su Jung, Sung-Ku Kwon, and Se-Young Choi\*

Department of Materials Science and Engineering, Kunsan National University, Kunsan 573-701, Korea

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

(Received June 29, 2006; Accepted July 14, 2006)

### Float 공법을 고려한 Plasma Display Panel용 기판유리 용융체의 특성

김기동<sup>†</sup> · 정우만 · 정현수 · 권성구 · 최세영\*

군산대학교 신소재공학과

\*연세대학교 신소재공학부

(2006년 6월 29일 접수; 2006년 7월 14일 승인)

#### ABSTRACT

In order to examine the working condition of melts in tin bath of float process it was investigated Sn diffusion behavior and solidification rate of melts for alkali-alkaline earth-silica PDP substrate glasses such as commercial CaO rich CS-77 glass, commercial Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> rich PD-200 glass and self developed SiO<sub>2</sub> rich T-series (T-2, T-4, T-6) glasses. In the case of Sn depth and concentration created in glass surface by ion exchange between Sn and alkali, T-series showed lower value than CS-77, especially T-2 is more excellent than PD-200. The solidification rate of melts expressed by cooling time between  $\log\eta=4$  and 7.6 dPa·s was low for T-series comparing with CS-77 and PD-200. Therefore, it was concluded that T-series is desirable considering forming condition in the tin bath of the float process.

**Key words :** Substrate glass, PDP, Glass composition, Sn depth and concentration, Solidification rate, Tin bath, Float process

#### 1. 서 론

PDP는 기체 방전에 의해 생성된 플라즈마를 이용하여 영상을 제공하는 표시소자로서 대형화에 용이하며 고휘도(brightness) 및 색재현력이 우수하여 차세대 디스플레이 기술로 크게 주목 받고 있다. 특히, PDP에서 기판유리의 역할은 내부 핵심부품을 보호하고 구현되는 이미지를 전달하는 기능을 하며, 기판유리로서 요구되는 성질은 주변 부품과 잘 어울릴 수 있는 적절한 변형점(strain point), 열팽창계수, 가시광선 영역에서의 높은 투과율(transmittance)과 투시과정에서 영상이전(wedges) 및 영상 비틀림(optical distortion) 등의 결점이 없는 고도의 내부균질도와 표면평탄도이다. 영상전달 결점은 유리표면의 국부적인 양면 평행도의 결점으로 발생함으로, 표면에 기복이 없는 매우 평탄한 표면을 가져야 한다.<sup>1,2)</sup> 더불어 PDP는 대면적의 평판형 디스플레이를 목표로 하면서 동시에 양산성을 고려한 다면취(多面取) 기법으로 제조되기 때문에 대형 기판유리가 요구된다. 따라서 상업적인 PDP 기판유리는 용융주석(molten tin)위에서 판상으로 성형되는 플로트(float)

공법에 의해 제조되고 있다.<sup>3,4)</sup>

플로트 공법은 Soda Lime Silicate(SLS)계 건축용 판유리와 자동차 유리를 생산하기 위해 고안된 방법으로, 1952년 영국의 Pilkington사에 의해 발명되어 현재 판유리의 제조 공법으로 가장 널리 사용되고 있다. 전체적인 공정은 Fig. 1에 나타낸 바와 같이 내화물로 축조된 용융로(melter)와 청징로(refiner)에서 원료의 용융 및 청징, 컨디셔너(conditioner)에서 성형에 적합한 온도 조절, 주석조(tin bath)에서 판상으로 성형 그리고 응력을 제거하는 서냉(annealing)으로 구성되어 있으며, 핵심공정은 판상으로 유리를 성형하는 주석조이다. 균질화된 용융 유리가 10<sup>3.5</sup>~10<sup>4</sup> dPa·s 점도를 유지한 상태로 스파우트립(spout lip)을 거쳐 주석조로 흘러 들어가며, 판유리 형태의 성형 과정은 용융유리 보다 비중이 크고 동시에 젖지 않는 용융주석(molten tin, Sn) 위로 흘러 들어가면서 넓고 얇은 형태의 원형(glass ribbon)으로 퍼지며, 용융유리, 용융금속, 로 분위기의 3상 사이에서 표면장력, 계면장력 그리고 중력이 평형상태에 도달하면 유리의 퍼짐이 중단되어 평형두께에 도달한다.<sup>5,6)</sup> 한편 주석조는 용융주석의 산화를 방지하기 위하여 수소와 질소의 공급에 의해 항상 환원 분위기로 유지된다. 플로트공법에 의해 제조된 판유리의 특징은 유리내부의 화학적인 균질도가 높고 표면 평탄도가 매우 우수하다는 것이다.

<sup>†</sup>Corresponding author : Ki-Dong Kim

E-mail : kdkim@kunsan.ac.kr

Tel : +82-63-469-4737 Fax : +82-63-469-4731

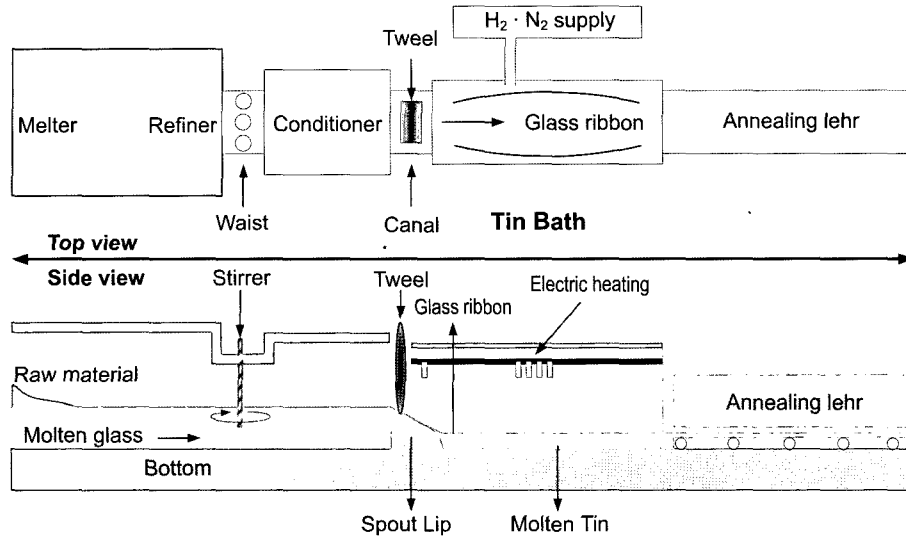


Fig. 1. Schematic diagram of float process for flat glass manufacture.

본 연구진은 최근에 PDP에서 요구하는 조건을 고려하여 새로운 조성의 유리(T-계열)를 개발하여 상용 기관유리의 여러 물리적 성질과 비교 검토한 바 있으나,<sup>7)</sup> 주석조의 특성을 고려한 성형 측면에서의 접근은 아직 시도된 바 없다. 본 연구에서는 플로트공법의 핵심공정인 주석조의 환경을 고려하여, 개발된 T-계열 유리와 상용 PDP 기관유리인 Asahi사의 PD-200, Saint-Gobain사의 CS-77를 대상으로 유리에 대한 Sn의 확산거동, 성형에 미치는 용융유리의 응고속도(solidification rate)를 평가하였다.

2. 실험 방법

2.1. 유리의 제조

시약급으로 조제한 유리 batch(원료혼합물)를 300 cc Pt/

10Rh 도가니를 사용하여 1550~1650°C에서 용융시키고 Pt/20Rh 교반기를 사용하여 균질화시킨 후, 흑연판에 판상으로 성형하였다. 성형된 유리는 650~700°C의 온도에서 2시간 유지 및 상온으로 분당 5°C씩 하강시키는 서냉공정을 거쳤다. T-계열 유리와 상용 PD-200, CS-77, SLS의 조성 및  $\log\eta=4 \text{ dPa}\cdot\text{s}$ 에 상응하는 온도를 Table 1에 나타내었으며, 각 조성의 상세특징은 이미 발표된 논문<sup>7)</sup>에 언급한 바 있다.

2.2. 주석(Sn)의 확산

플로트공법에서 판형태의 성형은 비중이 큰 용융주석(molten tin) 위를 용융유리가 통과하면서 이루어지며, 특히 용융주석과 직접 접촉하는 아랫면(tin side)은 위면(air side)과 비교하여 Sn의 침투량이 매우 크다. 따라서 Sn 침

Table 1. Compositions of Commercial PDP Substrate Glasses, T-Series, and SLS

|   | PD-200 | CS-77 | T-2   | T-4   | T-6  | SLS   |
|---|--------|-------|-------|-------|------|-------|
| SiO <sub>2</sub>  | 57.4   | 65.3  | 62.1  | 63.9  | 64.0 | 71.1  |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                              | 6.79   | 0.96  | 0.71  | 0.7   | 0.7  | 1.47  |
| Na <sub>2</sub> O   | 4.2    | 4.61  | 4.3   | 4.3   | 4.3  | 13.1  |
| K <sub>2</sub> O  | 6.59   | 5.54  | 6.4   | 6.4   | 6.4  | 0.83  |
| $\Sigma\text{R}_2\text{O}$                                  | 10.79  | 10.15 | 10.7  | 10.7  | 10.7 | 13.93 |
| MgO   | 1.98   | 0.29  | 4.08  | 4.03  | 4.04 | 4.04  |
| CaO   | 4.96   | 10.78 | 5.68  | 5.61  | 5.62 | 8.91  |
| SrO   | 6.88   | 7.07  | 5.11  | 8.44  | 5.89 |       |
| BaO   | 8.03   | 0.13  | 7.56  | 2.57  | 4.95 |       |
| $\Sigma\text{RO}$   | 21.85  | 18.27 | 22.43 | 20.65 | 20.5 | 12.95 |
| ZrO <sub>2</sub>  | 3.06   | 3.96  | 4.06  | 4.01  | 4.02 |       |
| Temperature at $\log\eta = 4 \text{ dPa}\cdot\text{s}$ (°C) | 1165   | 1150  | 1157  | 1150  | 1153 | 1039  |

투합량이 큰 유리를 공기 중에서 열처리하면 유리표면에 푸른색의 얼룩 “Bloom”이 나타나 광학적 성질을 저해하는 것으로 알려져 있으며, 이러한 이유는 유리 내부 및 표면에 존재하는 Sn이 유리의 전이점이상의 온도에서 표면으로 확산, 산화하여 수백 nm의 SnO<sub>2</sub>층을 형성하기 때문이다.<sup>8,9)</sup> 이러한 현상은 PDP 제조과정, 특히 반복 소성 공정 중에 발생하여 패널에 결함을 일으킬 수 있는 가능성이 있기 때문에, 서로 다른 조성을 소유한 기판유리의 경우 Sn의 확산거동을 상대적으로 평가할 필요가 있다. 본 연구에서는 성형과정에서 용융유리에 대한 Sn 침투 거동을 조사하기 위하여 소형 주석조를 함유한 전용 튜브로를 제작하여 N<sub>2</sub> 분위기에서 상용유리와 T-계열 유리를 적용시켰다. 상용유리와 T-계열 조성에 상응하는 유리를 제조한 후 5×5×15 cm 크기로 절단하여 경면연마를 실시하였다. Alumina boat내에서 Sn을 용융시키고, 용융주석위에 연마시편 유리를 띄워 유리의 성형점도(logη=4 dPa·s)에 상응하는 온도에서 10분간 유지한 후 서서히 냉각하였다. 냉각된 유리를 단면으로 절단한 후 EPMA(Electron Probe Micro Analyzer, JXA-8900R, JEOL, Japan)를 이용하여 Sn의 침투 농도 및 깊이를 분석하였다.

2.3. 응고속도

Fig. 2는 주석조에서 용융유리가 판상으로의 성형되는 과정과 각 구간에서의 점도를 나타낸 것으로, 스파우트립 내화물을 통과하여 주석조로 흘러 들어가는 용융유리는 평형두께를 형성하여 퍼져나가며 서냉 Lehr의 속도와 양 측에 설치된 edge restraining device에 의해 박판의 판유리로 변경된다.<sup>6)</sup> 주석조에서 유리의 두께조절은 인장응력에 응답하여 신장될 수 있는 점도를 가진 고온부에서 이

루어지며, 주석조의 저온부에서는 점도가 높기 때문에 유리가 이동하는 동안 치수와 형태의 변화는 없다. 따라서 목표하는 판유리 두께로 성형을 위해서는 성형구간의 점도(logη=4~7.6 dPa·s)에 대한 정밀한 제어가 중요하며, 각 조성의 유리에 대한 정밀제어 난이도는 성형구간에서 용융유리의 응고속도에 의존한다. 용융유리의 응고속도(Δlogη/Δt)는 성형구간에서 온도에 따른 점도 변화(Δlogη/T)와 시간에 따른 온도 변화(ΔT/Δt)를 추적하여 다음 식과 같이 나타낸다.<sup>11)</sup>

$$\frac{\Delta \log \eta}{\Delta T} \cdot \frac{\Delta T}{\Delta t} = \frac{\Delta \log \eta}{\Delta t}$$

본 연구에서 용융유리의 응고속도 측정을 위해 하부장 입로를 사용하였다. 1450°C에서 용융유리를 함유한 30 cc의 백금도가니에 열전대를 일정한 깊이(8 mm)만큼 삽입하여 10분 유지 후, 즉시 상온에 노출시켜 DAS-TC(Keithley, USA)를 사용하여 시간에 따른 온도변화를 측정하였다. 각 온도에 해당하는 점도 값은 이미 측정된 작업온도(T<sub>w</sub>:logη=4 dPa·s), 연화점(T<sub>s</sub>:logη=7.6 dPa·s)과 전이온도(T<sub>g</sub>:logη=13 dPa·s)를 VFT식(logη = A +  $\frac{B}{T-T_0}$ )에 대입하여 상수 A, B, T<sub>0</sub>를 구한 후 결정하였으며, 최종적으로 성형이 시작되는 점도인 logη=4 dPa·s로부터 성형의 최하한 점인 logη=7.6 dPa·s까지의 시간을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 주석의 침투 농도 및 깊이

Fig. 3은 PD-200, CS-77, 그리고 T-계열 유리의 단면을

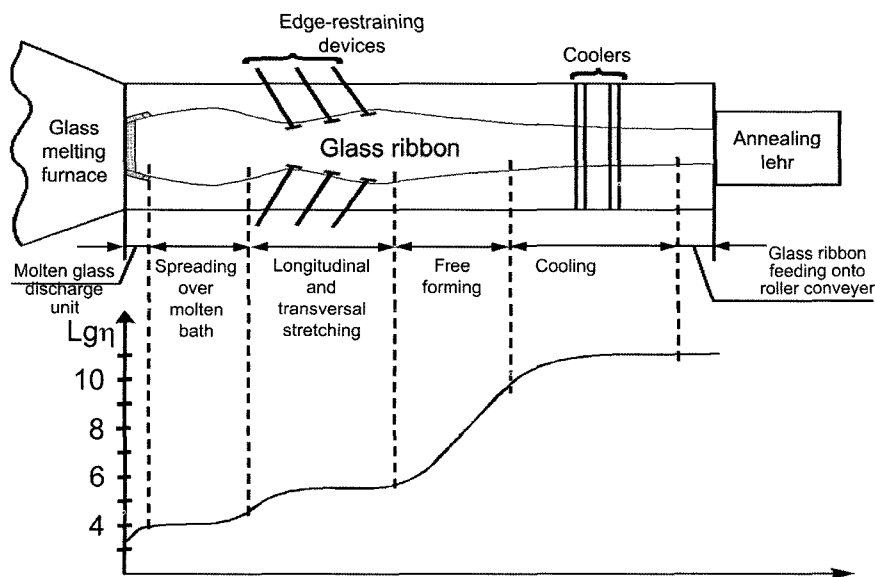


Fig. 2. Forming process and melt viscosities in tin bath.

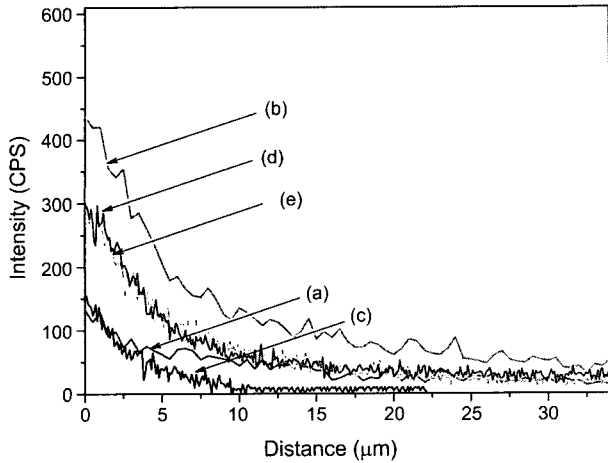


Fig. 3. Depth and concentration profile of Sn by EPMA at glass surface: (a) PD-200, (b) CS-77, and (c, d, e) T-series.

EPMA에 의해 line 분석한 결과로서 표면으로부터 내부로의 Sn 농도구배를 보여주고 있다. 분위기 기체로 N<sub>2</sub>만 사용하였고, Fe 성분이 거의 배제된 시약급 원료를 사용하였기 때문에 일반 상업적인 플로트유리에서 흔히 발견되는 tin enriched inner layer<sup>12)</sup>는 관찰되지 않았다. CS-77(b)는 intensity가 438 cps로 가장 큰 값을 나타냈으며, Sn 침투깊이도 가장 크다. T-계열의 경우 T-2(c)는 156 cps로 가장 낮은 intensity를 보이고 있으며, T-4(d)는 325 cps 그리고 T-6(e)는 301 cps로 CS-77에 비교해서 낮은 intensity와 적은 침투깊이를 나타내고 있다. PD-200(a)는 133 cps로 가장 낮은 intensity를 나타내고 있지만 Sn 침투깊이는 T-2(c) 보다 큰 값을 보이며 T-4(d), T-6(e)와 거의 유사한 값을 보인다. Fig. 3에 나타난 유리의 상이한 조성에 따른 Sn의 침투농도와 침투깊이의 차이는 Sn<sup>2+</sup>과 이온교환되는 유리내부의 알카리(Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>) 이온과 알카리토(특히, Mg<sup>++</sup>, Ca<sup>++</sup>) 이온의 함량과 실험조건인 logη=4에 상응하는 온도에 기인하는 것으로 예상할 수 있다. 알카리 함량의 측면에서 고찰해 보면, Sn<sup>0</sup>이 환원분위기의 조건에서 미량으로 존재하는 O<sub>2</sub>와 반응하여 생성된 Sn<sup>2+</sup>가 유리 내의 알카리 이온, 특히 이온반경이 작은 Na<sup>+</sup>과 이온교환에 의해 유리 내부로 침투한다. 따라서 실험온도는 유사하지만 다른 조성의 유리와 비교해서 4.61 wt%의 Na<sub>2</sub>O를 함유한 CS-77 유리에 대한 Sn 침투량과 깊이가 가장 클 것으로 예상되며, 이러한 예상은 Fig. 3의 결과와 일치한다. Sn의 확산은 유리의 조성뿐만 아니라 주변온도에도 의존한다.<sup>10)</sup> 따라서 온도의 측면에서 고찰해 보면, PD-200의 경우 Na<sub>2</sub>O의 함량이 4.2 wt%이지만 logη=4에 상응하는 온도가 1165°C로서 다른 유리에 비해 높아 침투 깊이에 크게 영향을 받고 있다. 그러나 상대적으로 낮은 온도를 보유하고 있는 T-계열은 PD-200 보다 침투 깊이가 작거나 유사한 것으로 나타난다.

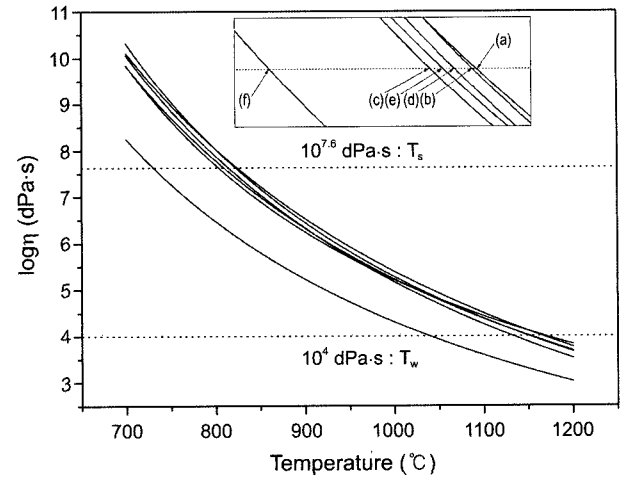


Fig. 4. logη versus temperature for PD-200 (a), CS-77 (b), T-series (c, d, e), and SLS (f) in viscosity range of logη = 4 and logη = 7.6.

### 3.2. 점도에 근거한 응고시간

점도와 성형조건과의 관계를 논하는데 있어, 일반적으로 점도의 온도의존성에 의거하여 기울기가 큰 짧은유리(short glass)와 완만한 긴유리(long glass)로 구분하며, 긴유리가 성형에 유리한 것으로 보고하고 있다.<sup>13)</sup> Fig. 4는 SLS계 및 PD-200, CS-77, T-계열 유리에 대한 logη=4와 전이점(T<sub>g</sub>) 사이의 온도의존성을 나타낸 것으로서, 그들간에 기울기 차이가 거의 나타나지 않는 것을 알 수 있다. 따라서 주석조내에서 판유리의 성형성을 온도의존성에 의거하여 비교 및 평가하는 데는 한계가 있으며, 점도의 온도의존성과 냉각속도의 개념을 동시에 도입한 응고속도를 이용하여 성형성을 평가하는 것이 합리적이다.<sup>11)</sup> 본 연구에서 시도한 응고속도( $\frac{\Delta \log \eta}{\Delta t}$ )는 시간의 변화에 따른 점도의 변화로서, 기울기에 따라 유리의 성형능력을 평가할 수 있다. 즉 기울기가 작을수록 응고속도가 길어지기 때문에 성형이 용이하며, 기울기가 클수록 응고속도가 짧기 때문에 성형조건이 복잡해진다. Fig. 5는 주석조에서 성형이 시작되는 점도인 logη=4에서 성형의 최하한 점도인 logη=7.6까지 냉각되는 시간을 측정하여 용융유리의 시간에 따른 점도 변화를 나타낸 것이며, 각 유리의 구체적인 냉각시간을 Table 2에 나타내었다. Fig. 5의 결과에 따르면 T-2의 기울기가 가장 작으며, CS-77이 가장 큰 기울기를 나타내고 있으며, 냉각시간으로 환산하면 Table 2에 나타낸 바와 같이 PD-200은 111초, CS-77은 108초이며, T-계열은 각각 129, 118, 126초로서 T-계열이 상용유리에 비해 응고시간이 상대적으로 길었다. 따라서 주석조에서 판유리로 성형될 때 적합한 점도구배를 부여하기 위해서는 PD-200과 CS-77 조성의 경우가 T-series에 비해서 정밀한 제어가 필요할 것으로 보인다. 물론 SLS계 유리의 경우 140초의 응고시간을 나타내기 때문에, 성형조건

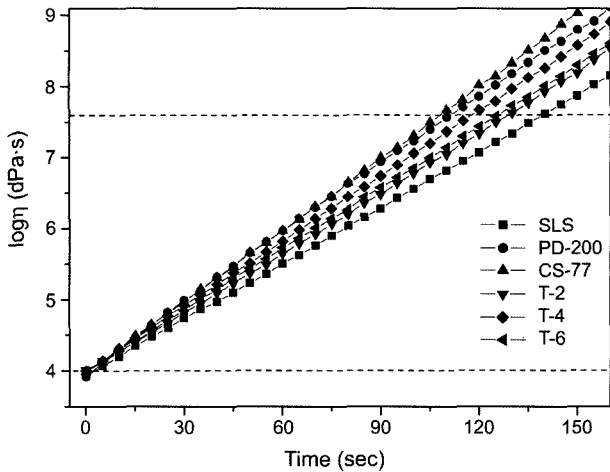


Fig. 5.  $\log\eta$  versus time for PD-200, CS-77, T-series, and SLS in viscosity range of  $\log\eta = 4$  and  $\log\eta = 7.6$ .

에 있어 PDP조성의 유리가 SLS계에 비해 전반적으로 정밀해야 함을 시사하고 있다. 이와 같이 여러 유리사이에 나타나는 응고시간의 차이는 유리의 비열과 전도도에 미치는 조성 및 온도를 근거로 설명할 수 있다. Table 1에 나타난 유리 조성을 근거로 Table 3의 아래에 표시한 sharp 등의 식을 이용하여  $\log\eta = 4$ 에 해당하는 온도와  $\log\eta = 7.6$ 에 해당하는 온도에서의 비열, Ammar 등의 식을 이용하여  $30^\circ\text{C}$ 에서의 열전도도를 계산한 결과를 Table 3에 나타내었다.<sup>14)</sup> Sharp 등이 조사한 유리의 비열에 미치는 여러 성분의 기여도를 살펴보면, 알카리산화물, 알카리토 산화물 그리고  $\text{SiO}_2$ 의 순서로 증가한다. 그러나 Table 3에 나타난 바와 같이 유리의 열전도도는 조성에 어느 정도 독립적이기 때문에 비열이 응고속도에 우세하게 영향을 미친다. 즉 비열이 큰 유리는 긴 응고시간을 나타낼 것이다. Table 2의 PDP계열과 SLS계 사이에 발생하는 응고시간의 큰 차이는 Table 3의 비열에서 나타나는 결과와 전반적으로 일치한다.

Table 2. Solidification Rate of PD-200, CS-77, T-Series, and SLS

|  | PD-200 | CS-77 | T-2 | T-4 | T-6 | SLS |
|--|--------|-------|-----|-----|-----|-----|
| Cooling time from $\log\eta = 4$ to $\log\eta = 7.6$ (sec) | 111    | 108   | 129 | 118 | 126 | 140 |

Table 3. Calculated Specific Heat and Thermal Conductivity of PD-200, CS-77, T-Series, and SLS

|  |                  | PD-200 | CS-77  | T-2    | T-4    | T-6    | SLS    |
|--|------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Specific heat<br>( $C_p$ )* (J/gK)                           | $\log\eta = 4$   | 0.2522 | 0.2678 | 0.2671 | 0.2621 | 0.2627 | 0.3212 |
|  | $\log\eta = 7.6$ | 0.2433 | 0.2585 | 0.2566 | 0.2528 | 0.2532 | 0.3080 |
| Thermal conductivity at $30^\circ\text{C}$ ( $10^{-3}$ W/mK) |                  | 1.0421 | 1.0818 | 1.0595 | 1.0907 | 1.0823 | 1.1110 |

$$*\text{Sharp식}^{14)}, C_{p,T} = \frac{0.00146T^2 \sum a_i p_i + 2T \sum a_i p_i + \sum c_i p_i}{(0.00146T + 1)^2}$$

여기서 T:  $^\circ\text{C}$ ,  $a_i$ ,  $c_i$ : Sharp 등이 제시한 유리를 구성하는 성분 i의 factor 값,  $p_i$ : 유리를 구성하는 성분 i의 wt%

#### 4. 결 론

본 연구에서는 alkali-alkaline earth-silicate계 상용 PDP 기판유리 CS-77, PD-200과 새로운 조성의 T-계열(T-2, T-4, T-6) 유리를 대상으로 플로트 성형공정인 주석조의 환경을 고려하여 유리에 대한 Sn의 확산거동, 용융유리의 응고속도를 평가하였다. 결과에 따르면,  $\text{N}_2$ 의 분위기와  $\log\eta = 4$ 에 상응하는 온도에서 실시한 Sn의 확산거동은 침투깊이와 양에 있어서 T-계열은 CS-77과 비교하여 낮은 값을 나타내고 있으며, 특히 T-2는 PD-200 보다 우수한 특성을 보였다.  $\log\eta = 4$ 와  $\log\eta = 7.6$  사이의 구간에서 측정된 응고속도는 냉각시간으로 환산해 볼 때 T-계열의 유리가 상용유리에 비해 길었다.

#### Acknowledgment

본 연구는 과학기술부 21세기 프론티어사업 정보디스플레이 사업단의 연구비지원으로 2002년부터 2004년까지 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### REFERENCES

1. R. Gy, S. Koch, N. E. Khiati, G. Courtemanche, J. Lapp, P. Barlier, and T. Ono, "New Glass Substrate for Color Plasma Panel," *SID Digest*, **27** 853-56 (1996).
2. K. Maeda, M. Nishizawa, T. Nakashima, and Y. Nakao, "Thermal Compaction of PDP Glass Substrates," *SID Digest*, **28** 544-47 (1997).
3. W. H. Dumbaugh, P. L. Bocko, and F. P. Fehlner, "Glasses for Flat-Panel Displays"; pp. 86-101 in *High-Performance Glasses* Ed. by M. Cable and J. M. Parker, Chapman and Hall, USA, 1992.
4. M. M. Dawne, "Glass Substrate for Flat Panel Displays," *MRS Bulletin*, **21** [3] 31-4 (1996).
5. W. C. Hynd, "Flat Glass Manufacturing Processes"; pp. 45-

- 106 in *Glass Science and Technology*. Ed. by D. R. Uhlmann, Academic Press, 1984.
6. C. K. Edge, "Float Glass"; pp. 43-50 in *Commercial Glasses*. Ed. by D. C. Boyd and J. F. MacDowell, The American Ceramic Society, USA, 1986.
  7. K. D. Kim, W. M. Jung, S. K. Kwon, and S. Y. Choi, "Composition and Properties of Substrate Glasses for Plasma Display Panel(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **43** [5] 293-98 (2006).
  8. G. H. Frischat, "On the Origin of the Tin Hump in Several Float Glasse," *J. Non-Cryst. Solid*, **283** 246-49 (2001).
  9. S. Takeda, "Precipitation of Nanometer-Sized SnO<sub>2</sub> Crystals and Sn Depth Profile in Heat-Treated Float Glass," *J. Non-Cryst. Solid*, **311** 273-80 (2002).
  10. Y. Hauashi, "The Diffusion Mechanism of Tin into Glass Governed by Redox Reactions During the Float Process," *J. Non-Cryst. Solid*, **282** 188-96 (2001).
  11. J. Hlavac, "The Technology of Glass and Ceramics," pp. 63-70, Elsevier Science Publishers, 1983.
  12. J. S. Sieger, "Chemical Characteristics of Float Glass Surfaces," *J. Non-Cryst. Solid*, **19** 213-20 (1975).
  13. H. Scholze, "Glas: Natur, Struktur, Eigenschaften," pp. 40-3, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1988.
  14. H. Scholze, "Glas: Natur, Struktur, Eigenschaften," pp. 330-39, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1988.