

رابطه بین ساختار و شفافیت در شیشه‌سرامیک‌های شفاف سیستم لیتیوم آلومینوسیلیکات حاوی بلورهای نانومتری β -کوارتز

محمد صادق شاکری*^۱ و محمد رضوانی^۲

۱- دانشجوی دکتری مهندسی مواد، پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

۲- استادیار گروه مهندسی مواد، دانشکده مکانیک، دانشگاه تبریز، تبریز، ایران

*ms.shakeri@merc.ac.ir

(تاریخ دریافت: ۱۳۹۰/۰۲/۰۹، تاریخ پذیرش: ۱۳۹۰/۰۵/۲۸)

چکیده

اتلاف شدت نور تابشی در اثر اندازه‌ی بلورهای رشد کرده در ساختار و اختلاف بین ضریب شکست فازهای بلورین و شیشه‌ای باعث شده است تا از شیشه‌سرامیک‌های شفاف در کاربردهای اپتیکی کمتر استفاده شود. در این تحقیق تاثیر کریستال‌های نانومتری محلول جامد β -کوارتز و β -ایوکریتایت بر میزان اتلاف پراکنشی نور تابشی در شیشه‌سرامیک‌های سیستم لیتیوم آلومینوسیلیکات با استفاده از تئوری‌های پراکنش نور Mie و Rayleigh بررسی شده است. مقایسه‌ی نتایج حاصل از آزمایشات عملی و محاسبات تئوریک تئوری‌های پراکنش نشان می‌دهد که وجود بلورهای نانومتری محلول جامد β -کوارتز که اختلاف ضریب شکست ناچیزی با زمینه‌ی شیشه‌ای دارند، میزان اتلاف از طریق پراکنش نور را به شدت کاهش می‌دهد. شیشه‌سرامیک‌های شفاف تولید شده در این تحقیق، بیش از ۹۰٪ نور ورودی را عبور داده و به منظور استفاده در کاربردهای اپتیکی، میزان شفافیت بسیار بالایی دارند.

واژه‌های کلیدی:

شیشه‌سرامیک شفاف، لیتیوم آلومینوسیلیکات، بلورهای نانومتری، محلول جامد β -کوارتز

۱- مقدمه

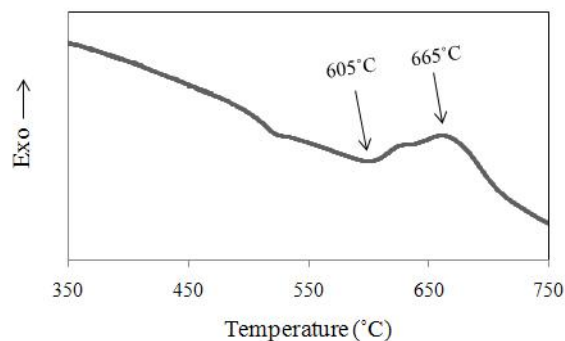
دو ویژگی بلورها و شیشه‌ها را دارا است، جهت کاربردهای اپتیکی مهیا سازد. از نقطه‌نظر اپتیکی، وجود دو ویژگی در شیشه‌سرامیک‌ها باعث ابقای شفافیت در ماده می‌شود. (۱) وجود اختلاف ضریب شکست کم بین فاز شیشه‌ای و بلورین و (۲) نانومتری بودن اندازه‌ی بلورها [۶-۱۱] شیشه‌سرامیک سیستم LAS با توجه به ترکیب شیشه پایه می‌تواند حاوی فازهای مختلف بلورین پس از فرآیند تبلور باشد. در میان فازهای بلورین

شیشه‌سرامیک‌ها در اثر فرآیند تبلور کنترل‌شده‌ی شیشه‌پایه تولید می‌شوند. معمولاً پس از تبلور، بیش از ۵۰٪ حجم قطعه را فاز بلورین تشکیل می‌دهد که در زمینه‌ی شیشه‌ای پخش شده‌اند [۱-۵]. با توجه به اینکه مواد شفاف در کاربردهای اپتیکی استفاده می‌شوند، اعمال شرایطی که باعث شفاف شدن شیشه-سرامیک شود، می‌تواند ماده‌ای جدید را که به طور همزمان هر

چندین دما قبل، بعد و روی دمای تبلور به منظور انجام فرآیند تبلور انتخاب شدند. عملیات تبلور در دماهای ذکر شده و به مدت زمان ۲ ساعت انجام گرفت. کوره الکتریکی با سرعت $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ از دمای اتاق تا دمای مورد نظر گرم شد، به مدت ۲ ساعت در آنجا ماند و سپس به آرامی و در کوره تا دمای اتاق سرد شد. با استناد به نتایج XRD اخذ شده توسط پرس سنج Siemens D500, Germany، نوع و اندازه‌ی فازهای بلورین محاسبه شدند. در نهایت طیف‌سنجی جذبی با استفاده از اسپکتروفوتومتر T70 UV-VIS PG instruments به منظور بررسی میزان شفافیت از نمونه‌های عملیات حرارتی شده در دماهای مختلف اخذ گردید.

۳- نتایج و بحث

شکل (۱) آنالیز حرارتی DTA شیشه‌ی $14.8\text{Li}_2\text{O}-20\text{Al}_2\text{O}_3-65.2\text{SiO}_2$ را نشان می‌دهد.



شکل (۱): آنالیز حرارتی DTA شیشه‌ی LAS

با استناد به منحنی DTA دمای استحاله‌ی شیشه‌ای، 517°C و دمای تبلور 665°C بدست آمده است. با استناد به نتیجه‌ی بدست آمده از شکل (۱)، دماهای 625°C ، 645°C ، 665°C و 685°C به عنوان دماهای تبلور در نظر گرفته شدند.

شکل (۲) الگوی XRD نمونه‌های تبلور یافته در دماهای مختلف را نشان می‌دهد. چنانچه مشخص است تقریباً در دمای 645°C تبلور کامل می‌شود.

وجود پیک فازهای مختلف بر روی زمینه‌ی برجسته‌ی شیشه‌ای (با شدت قابل مقایسه) که در الگوهای b و c به عنوان مشخصه‌ی اصلی شیشه‌سرامیک‌های شفاف نامبرده می‌شود. همچنین، با افزایش دمای تبلور، شدت پیک‌ها افزایش می‌یابد.

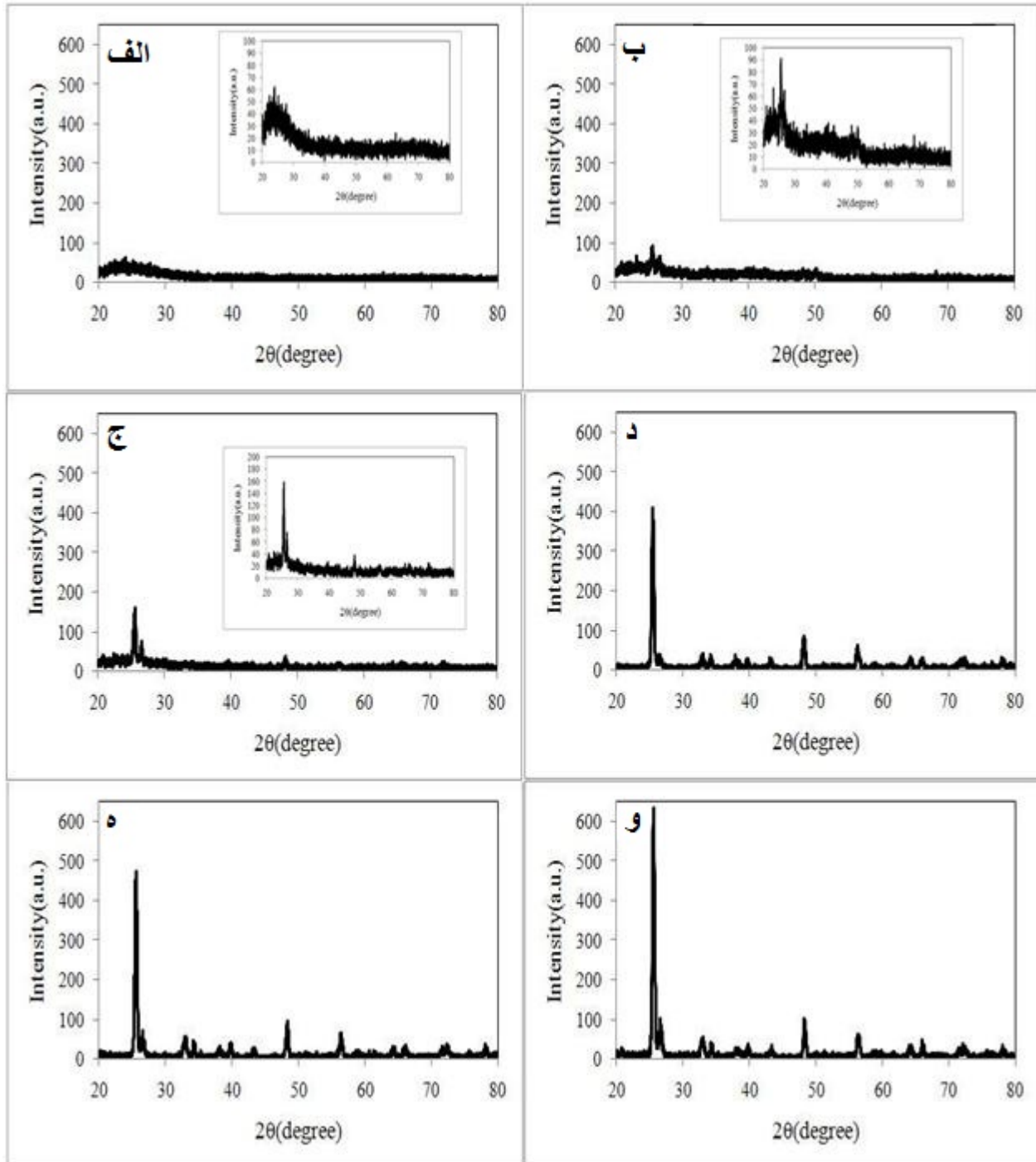
که قابلیت تبلور در این سیستم را دارند، فاز فرآپایدار محلول جامد β - کوارتز به دلیل ماهیت ساختاری، ضریب شکست تقریباً مشابه با شیشه پایه دارد. از این رو، تبلور فاز محلول جامد β - کوارتز شرط اول را محقق می‌سازد. حال در صورتی که شرایط عملیات تبلور را به نحوی انتخاب کنیم که فاز فرآپایدار β - کوارتز در اندازه‌های نانومتری (بر اساس قانون پراکنش نور Rayleigh حد اکثر 100 nm) تبلور یابد، شیشه‌سرامیک حاصله شفاف خواهد شد. وجود بلورهای با اندازه‌ی بزرگتر از 100 nm باعث پراکنش نور و مات شدن شیشه‌سرامیک می‌شود، در نتیجه نانو ساختار بودن ماده موردی الزامی است. شیشه‌سرامیک حاصله در کاربردهای اپتیکی همچون لیزر پر انرژی حالت جامد، فیبرهای نوری، تقویت کننده‌های نوری و غیره کاربرد دارد [۱۲-۱۸]. در این تحقیق تلاش شده است تا پس از انتخاب ترکیب مناسب پایه، عملیات حرارتی مناسب جهت تولید فازهای نانومتری محلول جامد β - کوارتز در زمینه‌ی شیشه‌ای لیتیوم آلومینوسیلیکات، انجام گیرد.

۲- روش انجام آزمایشات

با توجه به اینکه فاز محلول جامد β - کوارتز حاصل جدایش فازی در فصل مشترک فازهای شیشه‌ای، β - ایوکریپتایت و β - اسپودومن است، در نتیجه با توجه به نمودار فازی سیستم لیتیوم آلومینوسیلیکات، ترکیبی در فصل مشترک فازهای ایوکریپتایت و اسپودومن جهت فرآیند ذوب، انتخاب شد. با استفاده از مواد اولیه‌ی با خلوص بسیار بالا، ترکیب شیشه‌ی $14.8\text{Li}_2\text{O}-20\text{Al}_2\text{O}_3-65.2\text{SiO}_2$ (wt%) در بوته‌ی آلومینایی با استفاده از روش معمول ذوب و ریخته‌گری تهیه شد. شیشه‌ی ذوب شده در قالب فولادی $7.5 \times 1.5 \times 2\text{ cm}^3$ پیشگرم شده در دمای 550°C ریخته‌گری شد. قطعات شیشه‌ای با استفاده از دستگاه Wire Cut و اسید HF به ضخامت ۱ سانتی‌متر بریده شدند و سطح مقطع شیشه‌ی بریده شده به منظور انجام آزمایشات اپتیکی پولیش شد. به منظور بررسی دمای استحاله‌ی شیشه‌ای و دمای تبلور، آنالیز حرارتی افتراقی با استفاده از دستگاه Pyris Diamond TG/DTA, Perkin Elmer از نمونه‌ی شیشه‌ای اخذ شد و

به اندازه‌ی فاز بلوری نسبت داد. اندازه‌ی نانومتری بلورهای تشکیل یافته در زمینه‌ی شیشه‌ای، دلیل شفافیت شیشه‌سرامیک‌ها هستند. با توجه به پهن بودن پیک‌های بلوری در دو دمای تبلور 605°C و 625°C ، اندازه‌ی بلورهای تشکیل یافته را می‌توان با استفاده از رابطه‌ی شرر محاسبه کرد [۱۹].

از لحاظ میکروسکوپی و در محدوده‌ی طول موج نور مرئی، شیشه‌سرامیک‌های متبلور شده در دماهای 605°C و 625°C شفاف هستند اما شیشه‌سرامیک‌های متبلور شده در دماهای بالاتر مات شده‌اند. به علت اینکه نوع فاز متبلور شده یکسان است، دلیل شفافیت شیشه‌سرامیک‌ها در دماهای تبلور کمتر را می‌توان



شکل (۲): الگوی XRD: (الف) شیشه LAS، (ب) شیشه‌سرامیک متبلور شده در دمای 605°C ، (ج) 625°C ، (د) 645°C ، (و) 665°C و (و) 685°C

دلیل دیگر برای شفافیت شیشه‌سرامیک‌های متبلور شده در دماهای 605°C و 625°C ، نوع فاز بلورین متبلور شده می‌باشد. به این دلیل که ترکیب شیشه بر روی خط تعادلی فازهای ایوکریپتایت و اسپودومن انتخاب شده است، انتظار می‌رود که تولید بلور در این شیشه‌ها شامل هر دو فاز مذکور باشد. فاز محلول جامد β -کوارتز فازی فرا پایدار و حاصل جدایش فازی است که از فصل مشترک فازهای ایوکریپتایت، اسپودومن و زمینه‌ی شیشه‌ای جوانه می‌زند. در نتیجه انتظار می‌رود که با توجه به زمان کم عملیات حرارتی، فاز β -کوارتز در زمینه‌ی شیشه‌ای جوانه زده باشد. با استفاده از ICCD Card فازهایی که قابلیت تبلور دارند، ایوکریپتایت و بتا کوارتز می‌باشند [۱۴-۲۲]. با توجه به وجود پیک‌های مختص فاز محلول جامد β -کوارتز، مشخص است که شیشه‌سرامیک‌های حاصله شامل این فاز هستند. هر دو فاز ذکر شده ضریب شکست نزدیک به شیشه پایه داشته و به منظور ایجاد شیشه‌سرامیک شفاف مناسب هستند. شکل (۳) شفافیت شیشه و شیشه‌سرامیک متبلور شده در دمای 625°C را به صورت مقایسه‌ای نشان می‌دهد.



شکل (۳): مقایسه شفافیت شیشه و شیشه‌سرامیک

چنانچه مشخص است، شفافیت شیشه‌سرامیک کمتر از شیشه‌ی پایه می‌باشد. این نکته را می‌توان در مقایسه‌ی طیف جذبی شیشه و شیشه‌سرامیک در محدوده‌ی UV-Vis که توسط دستگاه اسپکتوفوتومتر Shimadzu گرفته شده است، به آسانی درک کرد. شکل (۴) طیف جذبی شیشه و شیشه‌سرامیک سیستم LAS

$$t = 0.9\lambda/B \cos \theta_B \quad (1)$$

که در این معادله، D اندازه بلور، B عرض پیک در نصف شدت بیشینه بر حسب رادیان، λ طول موج پرتو X تابشی و θ_B زاویه‌ی براگ مربوط به پیک ناشی از پراش است. جدول (۱) اندازه‌ی متوسط بلورها را در شیشه‌سرامیک‌های متبلور شده در دماهای مختلف نشان می‌دهد. وجود بلورهای نانومتری دلیل اصلی شفافیت شیشه‌سرامیک‌های متبلور شده در دماهای 625°C و 605°C می‌باشد. با افزایش دمای تبلور، میزان اندازه‌ی بلورها افزایش یافته (بیشتر از 100 nm) و در نتیجه شیشه‌سرامیک‌های متبلور شده در دماهای $645-685^{\circ}\text{C}$ شفاف نبوده و برای استفاده در تجهیزات اپتیکی مناسب نمی‌باشند. شایان ذکر است که به دلیل دقیق نبودن رابطه‌ی شرر برای اندازه‌های بلور بزرگتر از 100 nm ، اندازه‌ی متوسط بلور در نمونه‌های e ، d و f ذکر نشده است. همچنین، کسر حجمی فاز بلورین با استناد به رابطه‌ی Ohlberg-Strickler و به صورت زیر محاسبه گردید [20, 21].

$$x_c = \frac{I_g - I_x}{I_g - I_b} * 100 \quad (2)$$

در این رابطه، x_c میزان کسر حجمی فاز بلورین، I_g میزان شدت زمینه برای شیشه، I_x میزان شدت زمینه برای شیشه‌سرامیک و I_b شدت زمینه‌ی مخلوط مکانیکی مواد اولیه است. جدول (۱) میزان و اندازه‌ی بلور در شیشه‌سرامیک‌های مختلف را نشان می‌دهد.

جدول (۱): میزان و اندازه‌ی فازهای کریستالی

	متوسط اندازه‌ی بلور (nm)	کسر حجمی بلور (nm)
b	۳۰	۳۰
c	۷۰	۵۰
d	بزرگتر از ۱۰۰	۸۸
e	بزرگتر از ۱۰۰	۹۵
f	بزرگتر از ۱۰۰	۹۷

را نشان می‌دهد.

در این روابط، N تعداد ذرات در واحد حجم، V کسر حجمی ذرات بلوری و k فاکتور پراکنش است. با افزایش اندازه ذرات در مقادیر بسیار کم، میزان پارامتر k نیز افزایش می‌یابد تا اینکه اندازه‌ی ذرات به حد طول موج نور مرئی برسد و در اندازه ذرات بزرگ‌تر از طول موج نور، با افزایش اندازه ذرات، میزان پراکنش کاهش می‌یابد (در $r \gg \lambda$ میزان پراکنش ناچیز است). بیان ذکر شده را می‌توان با استفاده از تئوری‌های پراکنش Rayleigh و Mie اثبات کرد.

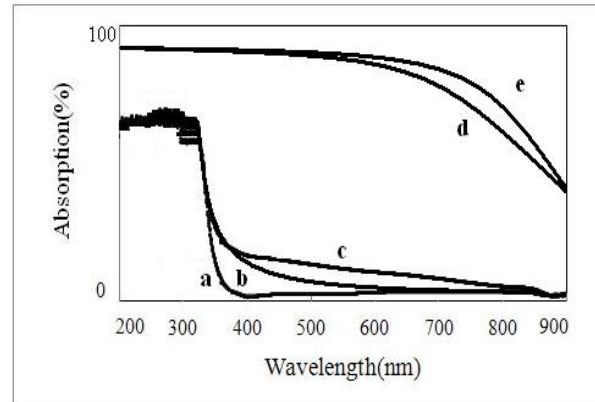
در صورتی که محیط پراکنش شامل دانه‌هایی با اندازه‌ی کمتر از $0.1-0.2$ طول موج نور مرئی باشد، در این صورت معادله‌ی پراکنش نور Rayleigh برای پرتو برخوردی صدق می‌کند و در این حالت، توزیع زاویه‌ای نور پراکنده شده از رابطه‌ی زیر محاسبه می‌شود.

$$I = \frac{(1 + (\cos \theta)^2) 8\pi^4}{L^2} \frac{r^6}{\lambda^4} \left[\frac{M^2 - 1}{M^2 + 2} \right]^2 I_0 \quad (7)$$

در این رابطه، θ زاویه‌ی پراکنش، L فاصله از مرکز پراکنش نسبت به شعاع r و M نسبت ضریب شکست ذره به محیط اطرافش می‌باشد. بر اساس این معادله شدت پراکنش متناسب است با نسبت شعاع ذره به طول موج نور (r/λ) و نسبت ضرایب شکست (M). در نتیجه برای هر مقدار از L ، λ ، هر قدر که نسبت r/λ کوچکتر و M بیشتر نزدیک به واحد باشد، ماده انتقال دهنده بهتر و شفاف‌تر است. در صورتی که اندازه‌ی مراکز پراکنش قابل مقایسه یا بزرگتر از λ باشد، در این صورت تئوری Rayleigh جای خود را به تئوری Mie می‌دهد. بر اساس تئوری Mie

$$I \sim \lambda^{-p} \quad (8)$$

که $p < 4$ است و با افزایش اندازه ذره، کاهش می‌یابد. بر اساس تئوری Mie با افزایش اندازه ذره، میزان پراکنش رو به جلو (زوایای $90^\circ-180^\circ$) بیشتر از پراکنش رو به عقب (کمتر از 90°) خواهد شد. این خاصیت باعث می‌شود تا با افزایش اندازه ذره، میزان پراکنش کاهش یابد. شکل (۵) شماتیک تغییرات میزان پراکنش را بر حسب اندازه ذره، نشان می‌دهد.



شکل (۴): طیف جذبی شیشه و شیشه‌سرامیک‌های سیستم LAS

از شکل (۴) مشخص است که میزان جذب در ناحیه‌ی مرئی و با افزایش انرژی فوتون تابشی، برای شیشه‌سرامیک نسبت به شیشه، افزایش می‌یابد. اما در این حالت نیز میزان شفافیت شیشه-سرامیک تقریباً برابر با 90% شفافیت شیشه پایه می‌باشد.

ماده‌ای را شفاف می‌گویند که بخش عمده‌ای از نور برخوردی را از خود عبور دهد، در عوض ماده مات هیچ عبوری ندارد. به دو دلیل شفافیت یک ماده کم می‌شود، جذب و پراکنش نور. جمع این فاکتورها بعلاوه‌ی بازتاب سطحی نور، با استفاده از معادله‌ی زیر نشان داده می‌شود.

$$I = I_0(1 - R)^2 \exp [-(\beta + S)X] \quad (3)$$

که

$$R = \left(\frac{n - 1}{n + 1} \right)^2 \quad (4)$$

I_0 و I به ترتیب نشان‌دهنده‌ی شدت نور عبور کرده و تاییده شده‌ی ابتدایی، β میزان ضریب جذب خطی، S میزان ضریب پراکنش، X میزان فاصله‌ای که نور در داخل ماده طی کرده، n ضریب شکست و R میزان انعکاس نور از سطح ماده است. میزان ضریب پراکنش نور با استفاده از معادلات زیر تعیین می‌شود.

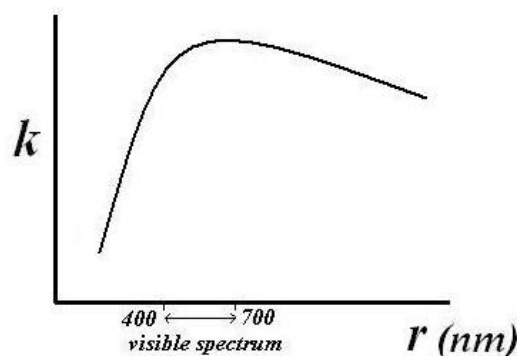
$$S = k\pi r^2 N \quad (5)$$

و

$$S = \frac{3}{4} kVr^{-1} \quad (6)$$

۵- مراجع

- [1] D. A. Duke and G.A. Chase, "Glass-Ceramics for High Precision Reflective-Optic Applications", Applied Optics, Vol. 7, No. 5, pp. 813-823, 1968.
- [2] P. Hartmann, et al., "Optical glass and glass ceramic historical aspects and recent developments: a Schott view", Applied Optics, Vol. 49, No. 16, pp. 157-176, 2010.
- [3] F. El-Diasty, et al., "Optical band gap studies on lithium aluminum silicate glasses doped with Cr³⁺ ions", Journal of Applied Physics, Vol. 100, pp. 09351-11, 2006.
- [4] J. F. Shackelford, R.H. Doremus, "Ceramic and Glass Materials Structure, Properties and Processing", 1st ed., Springer, 2002.
- [5] W. Holand and G. Beall, "Glass Ceramics Technology", 2nd ed., American Ceramic Society, Westerville, 2002.
- [6] H. Bach, D. Krause, "Low Thermal Expansion Glass Ceramics", 1st ed., Springer-Verlog, Berlin, Heidelberg, 2005.
- [7] A. Buch, et al., "Transparent glass ceramics: Preparation, characterization and properties", Materials Science and Engineering, Vol. 71, pp. 383-389, 1985.
- [8] A. Arvind, et al., "The effect of TiO₂ addition on the crystallization and phase formation in lithium aluminum silicate (LAS) glasses nucleated by P₂O₅", Journal of Physics and Chemistry of Solids, Vol. 69, pp. 2622- 2627, 2005.
- [9] K. Park and D. Shin, "The correlation between the crystalline phases and optical reflectance in glass ceramics for IR reflector", Journal of Ceramic Processing Research, Vol. 3, No. 3, pp. 153-158, 2002.
- [10] M. Clara Gonçalves, et al., "Rare-earth-doped transparent glass ceramics", C. R. Chimie, Vol. 5, pp. 845-854, 2002.
- [11] P. Riello, et al., "Nucleation and crystallization behavior of glass-ceramic materials in the Li₂O-Al₂O₃-SiO₂ system of interest for their transparency properties", Journal of Non-crystalline Solids, Vol. 288, pp. 127-139, 2001.
- [12] H. Zhaoxia, et al., "Effect of Crystallization of Li₂O-Al₂O₃-SiO₂ Glasses on Luminescence Properties of Nd³⁺ Ions", Journal of Rare Earths, Vol. 24, pp. 418 - 422, 2006.
- [13] M. Sirota, et al., "glass-ceramics for laser applications", US Patent, No. 0207425 A1, 2008.
- [14] G. Feng, et al., "Transparent Ni²⁺-doped lithium aluminosilicate glass-ceramics with broadband infrared luminescence", Journal of Alloys and Compounds, Vol. 457, pp. 506-509, 2008.
- [15] A. A. Dymnikov, et al., "The structure of luminescence centers of neodymium in glasses and transparent glass-ceramics of the Li₂O-Al₂O₃-SiO₂ system", Journal of Non-Crystalline Solids, Vol. 196, pp. 67-72, 1996.
- [16] A. M. Malyarevich, et al., "Nanosized glass-ceramics doped with transition metal ions: nonlinear spectroscopy and possible laser applications", Journal of Alloys and Compounds, Vol. 341, pp. 247-250, 2002.
- [17] G. Doulon, 'Luminescence in glassy and glass ceramic



شکل (۵): شماتیک تغییرات میزان پراکنش بر اساس تئوری‌های Rayleigh و Mie

اتلاف پراکنش تئوریک K برای N ذره‌ی مستقل در محدوده‌ی اندازه‌ی ذرات Rayleigh با استفاده از تئوری پراکنش Mie در محدوده‌ی Rayleigh به صورت زیر محاسبه می‌گردد [23].

$$C_{sca} = \left(\frac{128}{9}\right) (NV) \frac{\pi^4 a^3}{\lambda^4} (\Delta n \bar{n})^2 \quad (9)$$

که C_{sca} سطح مقطع هر بلور، V کسر حجمی بلورها و a شعاع متوسط بلور می‌باشند. Δn و \bar{n} به ترتیب میزان اختلاف و متوسط ضرایب شکست زمینه‌ی شیشه‌ای (۱/۵۳۵) و بلور (۱/۵۰۵) می‌باشد. مقایسه‌ی داده‌های آزمایشی (شکل (۴)) و محاسبات تئوریک (با استفاده از موارد ارائه شده در جدول (۱)) نشان می‌دهند که، بازده شفافیت شیشه‌سرامیک‌های حاصله (نمونه‌های b و c) در مقایسه با شیشه‌ی پایه، بیشتر از ۹۵٪ می‌باشد. اختلاف جزئی در میزان ذکر شده را می‌توان به وجود تخلخل، ناهمگنی ساختاری و جدایش فازی ناشی از تبلور نسبت داد.

۴- نتیجه‌گیری

- شیشه‌سرامیک‌های شفاف با استفاده از تبلور کنترل‌ی در سیستم لیتیوم آلومینوسیلیکات تولید شدند.
- نمونه‌های حاوی بلورهای نانومتری فاز محلول جامد β -کوارتز شفافیت تقریباً برابر با شیشه‌ی پایه داشته و بازده شفافیتی بیش از ۹۵٪ دارند.
- بر اساس تئوری‌های پراکنش Mie و Rayleigh، میزان پراکنش در محدوده‌ی طول موج نور مرئی بیشینه می‌باشد.

- materials", *Materials chemistry and physics*, Vol. 16, pp. 301-347, 1987.
- [18] I. A. Denisov, et al., "Study of the optical absorption and luminescence of transparent aluminosilicate glass-crystal materials with a CoO additive", *Journal of Optics Technology*, Vol. 70, pp. 12, 2003.
- [19] B. D. Cullity, S.R. Stock, "Elements of X-ray diffraction", 3rd edition, Prentice Hall Publication, 2001.
- [20] A. I. Berezhnoi, A.S.Krasnikov, "A method for determining the quantitative content of phases in glass-ceramics", Vol. 61, No. 5-6, pp. 180-182, 2004.
- [21] S. Khonthon, S.Morimoto, Y. Ohishi, "Absorption and emission spectra of Ni-doped glasses and glass-ceramics in connection with its Co-ordination number", *Journal of non-crystalline solid*, Vol. 114, No. 9, pp. 791-794, 2006.
- [22] K. Nakagawa, T. Izumitani, "Metastable phase separation and crystallization of $\text{Li}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ glasses: Determination of miscibility gap from the lattice parameters of precipitated β -quartz solid solution", *Journal of non-crystalline solid*, Vol. 7, pp. 168-180, 1972.
- [23] A. Edgar, G.V.M. Williams, J. Hamelin, "Optical scattering in glass-ceramics", *Current Applied Physics*, Vol. 6, pp. 355-358, 2006.