

球磨转速对 Nd:YAG 透明陶瓷的显微结构及光学性能的影响

刘婧^{1,2}, 刘军¹, 李江², 林丽^{1,2}, 潘裕柏², 程晓农¹, 郭景坤²

(1. 江苏大学 材料科学与工程学院, 镇江 210031; 2. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 透明光功能无机材料重点实验室, 上海 200050)

摘要: 以高纯商业 Y_2O_3 、 $\alpha-Al_2O_3$ 和 Nd_2O_3 粉体为原料, 以 TEOS(正硅酸乙酯)和 MgO 为烧结助剂, 采用固相反应和真空烧结技术制备了 1.0at%Nd:YAG 透明陶瓷。系统研究了球磨转速(球磨时间 10 h)对混合粉体的尺寸以及对陶瓷样品致密化行为、显微结构和光学性能的影响。结果表明: 通过球磨过程可以充分细化原料粉体的颗粒; 随着球磨转速的提高, 陶瓷烧结时样品中的气孔能更好地排除。但是球磨转速过高时, 陶瓷烧结体中存在少量的富铝第二相会降低样品的光学透过率。当球磨转速为 130 r/min 时, 真空烧结($1760^\circ\text{C} \times 50\text{ h}$)所得 Nd:YAG 透明陶瓷的显微结构均匀致密, 几乎没有晶界和晶内气孔存在, 样品在 1064 nm 处的直线透过率高达 83%。

关键词: Nd:YAG 激光陶瓷; 球磨转速; 显微结构; 光学性能

中图分类号: TQ129 文献标识码: A

Influence of Ball Milling Speed on Microstructure and Optical Transparency of Nd:YAG Ceramics

LIU Jing^{1,2}, LIU Jun¹, LI Jiang², LIN Li^{1,2}, PAN Yu-Bai², CHENG Xiao-Nong¹, GUO Jing-Kun²

(1. School of Materials Science and Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 210031, China; 2. Key Laboratory of Transparent Opto-functional Inorganic Materials, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

Abstract: Transparent 1.0at%Nd:YAG ceramics were fabricated by the solid-state reaction and vacuum sintering method using Y_2O_3 , $\alpha-Al_2O_3$ and Nd_2O_3 as starting powders. These powders were mixed in ethanol with MgO and TEOS as sintering aids and ball milled at different speeds for 10 h. Effects of ball milling speed on the particle size of powder mixtures as well as the densification process, the microstructure and the optical transparency of Nd:YAG ceramics were mainly investigated. It is showed that coarse powders can be ground into fine particles with increase of the ball milling speed up to 130 r/min. Porosities of the sintered Nd:YAG ceramics decrease with the increase of ball milling speed. Al-rich secondary phase can be observed in the microstructure of Nd:YAG ceramics when the ball milling speed is over-high, and it will cause a decrease in the optical transmittance. For the sample sintered at 1760°C for 50 h from the powder mixture ball milled at 130 r/min, the in-line transmittance reaches 83% at 1064 nm and there are almost no pores at the grain boundaries and inner grains.

Key words: Nd:YAG laser ceramics; ball milling speed; microstructure; optical transmittance

目前固体激光器在国防、军事、科研、医疗和工业等各领域的应用越来越广泛。激光材料是固体

收稿日期: 2014-12-01; 收到修改稿日期: 2015-02-13

基金项目: 国家自然科学基金(50990301, 51302298); 2013 年普通高校研究生科研创新计划项目(CXLX13_650)
National Natural Science Foundation of China (50990301, 51302298); Colleges and Universities Plans to Graduate Research and Innovation of 2013(CXLX13-650)

作者简介: 刘婧(1986—), 女, 博士研究生. E-mail: liujing53302@163.com

通讯作者: 李江, 研究员. E-mail: lijiaang@mail.sic.ac.cn

激光器的主体,常用的激光基质材料是 Nd:YAG 单晶和钕玻璃^[1-3],但是 Nd:YAG 单晶生长周期长,难以实现大尺寸、高掺杂浓度和复合结构制备^[4];钕玻璃的光学质量好,但它的强度和热导率都较低,不适用于高功率连续激光器。早期的透明陶瓷由于光学散射损耗高而不能用作固体激光增益介质,直到 1995 年,日本学者 Ikesue 等^[5]采用固相反应和真空烧结技术制备了高质量的 Nd:YAG 透明陶瓷,并且首次实现连续激光输出。此后,随着透明陶瓷制备技术和激光二极管(LD)泵浦技术的发展,激光陶瓷取得了突破性的进展^[2,6]。研究发现,Nd:YAG 陶瓷既有高强度、高热导率等优点,又能进行高浓度掺杂和复杂结构制备,其光学性能与提拉法制备的 Nd:YAG 单晶相近,甚至更优^[2,3,6-8]。Nd:YAG 透明陶瓷激光性能的突破性提升,引起了国际社会对激光陶瓷领域的广泛关注^[7-8]。国内相关单位也在激光陶瓷研究方面开展了大量研究^[8-10]。其中,中国科学院上海硅酸盐研究所于 2006 年在国内首次实现了 Nd:YAG 透明陶瓷的连续激光输出,并于 2013 年实现了大尺寸 Nd:YAG 陶瓷的 4.35 kW 准连续激光输出^[11]。

制备高质量 YAG 透明陶瓷的方法主要有两种:固相反应烧结氧化物混合粉体^[12-14]和非反应烧结湿化学法合成的 YAG 纳米粉体^[15-18]。固相反应法制备 YAG 透明陶瓷的工艺复杂,每一个工艺步骤都会影响 YAG 陶瓷的光学质量。所以,要实现高质量 YAG 激光陶瓷的可控制备,必须严格控制每一个工艺环节。目前,已经有大量关于粉体的合成与改性^[19-21]、添加剂的选择与用量控制^[20-24]、成型方式的探索^[25]、烧结过程的控制^[26]、复合结构设计^[27]、后处理工艺改进等^[28]的文献报道。采用固相反应法制备 YAG 透明陶瓷,首先要实现氧化物粉体的有效破碎和均匀混合,这样才能提高素坯密度及其均匀性,并最终获得结构均匀致密的陶瓷烧结体^[29]。因此,粉体球磨混合工艺的控制与优化在 YAG 透明陶瓷的制备工艺中显得至关重要。

本工作以商业高纯氧化铝(α -Al₂O₃)、氧化钇(Y₂O₃)和氧化钕(Nd₂O₃)粉体为原料,以正硅酸乙酯(Tetraethyl orthosilicate, TEOS)和氧化镁(MgO)为烧结助剂,采用固相反应和真空烧结技术制备 1.0at%Nd:YAG 透明陶瓷。重点研究了球磨转速对混合粉体特性及对 Nd:YAG 陶瓷烧结过程中致密化行为、显微结构和陶瓷光学透过率的影响。

1 实验方法

以商业高纯氧化钇(Y₂O₃)、氧化铝(α -Al₂O₃)和氧化钕

(Nd₂O₃)粉体为原料,按 1at%Nd:YAG(Nd_{0.03}Y_{2.97}Al₅O₁₂)的化学计量比准确称取氧化钇、氧化铝和氧化钕粉体质量。以氧化镁(MgO)和正硅酸乙酯(TEOS)为烧结助剂,添加量分别为 0.08wt%和 0.8wt%,以无水乙醇为球磨介质,用行星式球磨机球磨混合粉料 10 h,转速为 70~170 r/min。球磨混合浆料在 80℃的烘箱中干燥,过 74 μ m 筛,在 600℃马弗炉中煅烧 4 h 以除去残留有机物。煅烧后的粉体用干压成型的方法压成 ϕ 20 mm 的小圆片(60 MPa),然后冷等静压成型(250 MPa)得到陶瓷素坯。成型后的素坯放置在真空钨丝炉中,在不同温度下保温不同时间进行烧结。烧结后的陶瓷样品在 1450℃退火 20 h 以消除氧空位,最后进行双面抛光至 1 mm。

采用日本日立公司生产的 S-4800 场发射扫描电子显微镜(FESEM, Field Emission Scanning Electron Microscopy)观测原料粉体的微观形貌。采用 Micromeritics 公司 ASAP2010 型比表面积测试仪测试粉体的比表面积(BET)。采用阿基米德法测量烧结后陶瓷样品的密度。采用日本 JEOL 公司的 JSM-6700 型场发射扫描电子显微镜(FESEM)观测陶瓷样品的显微结构并用划线法测量样品的晶粒尺寸。采用美国 VARIAN 公司的 Cary-5000 型紫外-可见-近红外分光光度计(UV-VIS-NIR Spectrophotometer)测量陶瓷样品的直线透过率。

2 结果与讨论

图 1 为高纯商业 Y₂O₃、 α -Al₂O₃ 和 Nd₂O₃ 粉体的 FESEM 形貌照片,从图中可以看出:Y₂O₃、 α -Al₂O₃ 和 Nd₂O₃ 的平均粒径分别为 3、0.3 和 1 μ m。Y₂O₃ 颗粒比较大,每个大颗粒由许多小颗粒团聚堆积而成,每个小颗粒约 70 nm, α -Al₂O₃ 的颗粒较小,团聚较少、分散性较好,而 Nd₂O₃ 的颗粒尺寸介于两者之间。

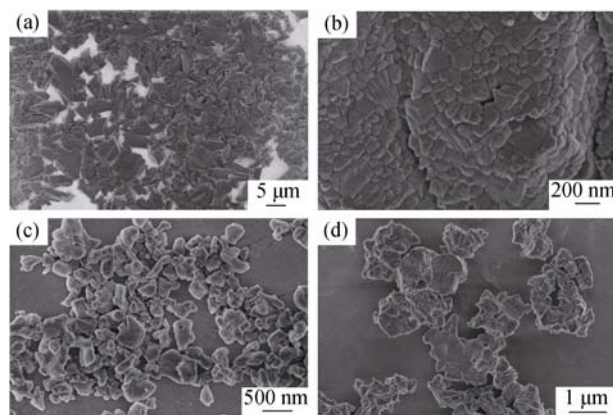


图 1 原料粉体的显微形貌照片

Fig. 1 FESEM micrographs of the raw powders

(a) Y₂O₃; (b) Y₂O₃ (at high magnification); (c) α -Al₂O₃ and (d) Nd₂O₃

图 2 为不同转速球磨后混合粉体的微观形貌,从图中可以看出,随着球磨转速的增大,粉体的粒度减小,可以达到 1~2 μm 左右。说明原始的粗颗粒可以通过球磨工艺破碎成适合制备透明陶瓷的细颗粒,增大球磨转速可有效地破碎混合原料粉体。表 1 为经不同转速球磨后的混合粉体的比表面积。从表中可以看出,随着球磨转速的提高,球磨破碎效果变好。

图 3 为不同转速球磨后混合粉体经 1760 $^{\circ}\text{C}\times 50\text{ h}$ 真空烧结所得 Nd:YAG 透明陶瓷($\phi 16\text{ mm}\times 1\text{ mm}$)的实物照片,从图中可以看出,除了左边第一个样品外,肉眼所见其他样品透明度都较高,样品下面的字都清晰可见。图 4 为图 3 中样品所对应的透过率曲线,从图中可见, Nd:YAG 陶瓷的透过率随着球磨转速的增

大而提高,当转速为 130 r/min 时达到最高值,样品在 1064 nm 和 400 nm 处的透过率分别为 83%和 80.9%左右;当转速继续增大时,透过率有所下降。

为了探索球磨转速对 Nd:YAG 陶瓷透过率的影响,实验对不同球磨转速下获得的 Nd:YAG 陶瓷的致密化行为和微结构演化做了一系列分析。图 5 为不同转速球磨的混合粉体在 1550 $^{\circ}\text{C}$ 烧结不同时间所得样品的致密化曲线,从图中可以看出,当烧结温度一定时,每个陶瓷样品的密度随着烧结时间的延长而增大;在各个保温时间点均是球磨转速高的陶瓷样品相对密度较高,但所有的样品致密度都不高。这说明在烧结温度较低(1550 $^{\circ}\text{C}$)时,即使保温时间较长(20 h)也难以得到高致密度的陶瓷样品。

表 1 经不同转速球磨后混合粉体的比表面积
Table 1 Specific surface areas (S_{BET}) of powder mixtures ball milled at different speeds for 10 h

Ball milling speed/(r·min ⁻¹)	70	90	110	130	150	170
$S_{\text{BET}}/(\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1})$	5.833	6.275	6.985	7.295	7.370	7.412

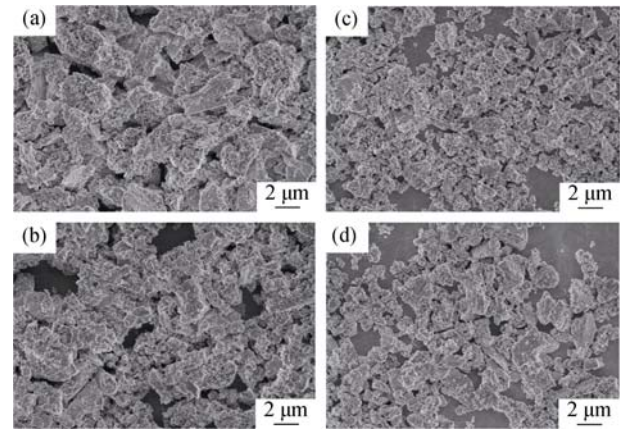


图 2 经不同转速球磨(球磨 10 h)后的混合粉体的 FESEM 形貌照片
Fig. 2 FESEM micrographs of the powder mixtures ball milled at different speeds for 10 h
(a) 70 r/min; (b) 90 r/min; (c) 130 r/min; (d) 170 r/min

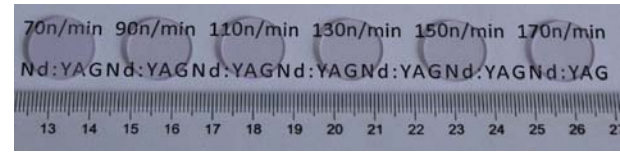


图 3 不同转速球磨的混合粉体经 1760 $^{\circ}\text{C}\times 50\text{ h}$ 真空烧结所得 Nd:YAG 陶瓷的实物照片
Fig. 3 Photographs of Nd:YAG ceramics sintered at 1760 $^{\circ}\text{C}$ for 50 h from the powder mixtures ball milled at different speeds

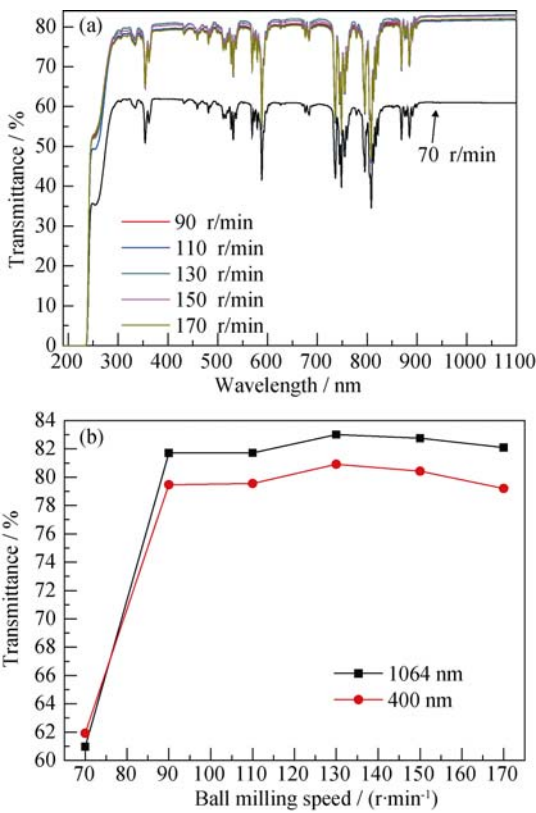


图 4 不同转速球磨的混合粉体经 1760 $^{\circ}\text{C}\times 50\text{ h}$ 真空烧结所得 Nd:YAG 陶瓷的透过率曲线
Fig. 4 In-line transmittances of Nd:YAG ceramics sintered at 1760 $^{\circ}\text{C}$ for 50 h from powder mixtures ball milled at different speeds
(a) 190–1100 nm; (b) 1064 and 400 nm

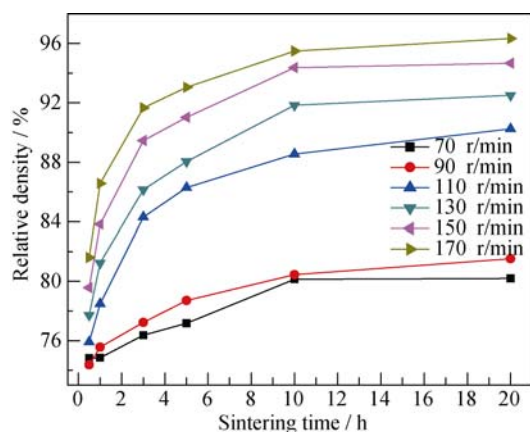


图 5 不同转速球磨的混合粉体在 1550℃ 烧结不同时间所得 Nd:YAG 陶瓷的致密化曲线

Fig. 5 Relative density versus sintering time at 1550 °C for Nd:YAG ceramics from powder mixtures ball milled at different speeds

图 6 为不同转速球磨的混合粉体在不同温度烧结 2 h 后样品的致密化曲线, 从图中可以看出烧结温度在 1500~1650℃ 之间, 随着球磨转速的增大, 陶瓷样品的相对密度提高, 且球磨转速高的样品能在较低的烧结温度得到较高的致密度; 在 1700℃ 以上烧结样品的相对密度没有很大的差距。对于同一种球磨混合粉体, 陶瓷样品的相对密度随着烧结温度的升高而增大。

图 7 为不同转速球磨所得样品在 1600℃×2 h 真空烧结后所得陶瓷样品的热腐蚀表面形貌。从图中可以看出, 随着球磨转速的增大, 陶瓷表面气孔逐渐减少, 气孔体积逐渐减小, 致密化逐渐增大, 这与图 6 所示的结果一致。对转速为 170 r/min 球磨的混合粉体样品经过 1600℃×2 h 真空烧结后所得陶瓷样品进行表面背散射微观形貌及选区元素定量

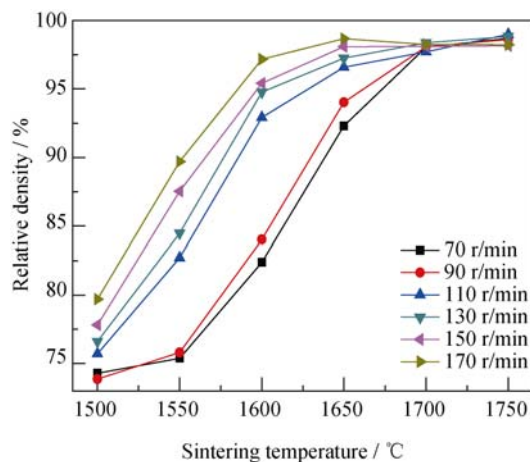


图 6 不同转速球磨的混合粉体在不同温度烧结 2 h 后 Nd:YAG 陶瓷样品的致密化曲线

Fig. 6 Relative density versus sintering temperature for Nd:YAG ceramics from powder mixtures ball milled at different speeds for 2 h

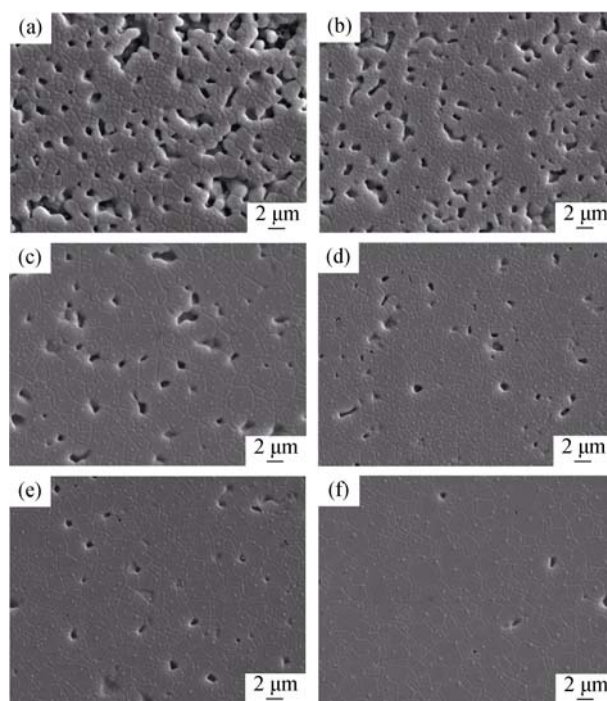


图 7 不同转速球磨(球磨 10 h)的混合粉体在 1600℃×2 h 真空烧结后所得陶瓷样品的热腐蚀表面形貌

Fig. 7 SEM micrographs of ceramics sintered at 1600°C for 2 h from powder mixtures ball milled at different speeds for 10 h (a) 70 r/min; (b) 90 r/min; (c) 110 r/min; (d) 130 r/min; (e) 150 r/min; (f) 170 r/min

分析, 结果发现, 样品内部含有富铝第二相(Al 和 Y 元素摩尔比为 5.67)。这可能是由于球磨转速很高后, 磨球与球磨罐之间的碰撞增强而带入了更多的氧化铝碎屑所造成的。

图 8 分别为 70、90、130 和 170 r/min 转速球磨的混合粉体在 1500~1750℃ 烧结 Nd:YAG 陶瓷的轨线图。从图中可以看出, 随着相对密度的增加, 样品

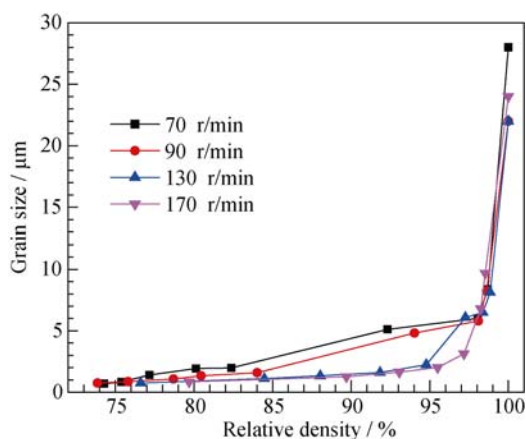


图 8 不同转速球磨混合粉体在 1500~1750℃ 之间烧结 Nd:YAG 陶瓷的轨线图

Fig. 8 Sintering trajectory for Nd:YAG ceramics sintered between 1500°C and 1750°C from powder mixtures ball milled at different speeds

的晶粒尺寸增大, 相对密度达到 95%以后, 晶粒尺寸快速增长。当相对密度小于 95%时, 球磨转速为 70 和 90 r/min 的样品晶粒尺寸较相同致密度下转速为 130 和 170 r/min 球磨样品的晶粒尺寸大, 这主要是由于球磨转速太低时混合粉体的大颗粒破碎不充分, 在较低温度烧结时, 大颗粒间首先发生烧结导致样品平均晶粒尺寸较大。而值得注意的是转速为 70 和 90 r/min 球磨样品在致密度还比较低的时候晶粒尺寸就开始快速增长, 容易留下大量残余气孔, 这对于整个致密化过程, 尤其是透明陶瓷的制备来说是不利的。由此可见球磨转速或者说球磨后所得粉体颗粒尺寸大小对于后续的陶瓷致密化过程有显著的影响。

图 9 为不同球磨转速所得混合粉体在 1550℃真空烧结 2、5 和 10 h 的陶瓷样品腐蚀表面形貌, 由图可以看出, 随着保温时间延长, 所有样品的致密增加, 气孔逐渐减少, 晶粒长大, 与图 5 所示一致。然而, 对比不同转速球磨的混合粉体在同一烧结条件下所得 Nd:YAG 陶瓷的显微结构发现, 当球磨转速为 170 r/min 时, 样品的烧结致密化程度较高, 晶粒尺寸较大。这是因为高速球磨(170 r/min)使混合粉体具有更多的缺陷和较高的活化能, 导致其在相同条件下更容易烧结致密化。

为了更加直观地研究各种球磨混合粉体在 1550℃烧结时的晶粒生长情况, 我们计算了各种样

品在该烧结温度下的晶粒生长速率常数 k 。晶粒生长指数(n)和速率常数(k)可根据公式(1)确定:

$$G^n - G_0^n = kt \quad (1)$$

其中, G 为平均晶粒尺寸, 这里 G_0 定义为 1550℃×2 h 真空烧结后的 Nd:YAG 陶瓷的平均晶粒尺寸, t 是保温时间, 晶粒生长指数 n 的范围在 2~4。本实验中球磨转速为 70、90、130 和 170 r/min 得到的混合粉体制备的陶瓷样品在 $n=3$ 时的拟合情况更好, R^2 均在 0.995 以上, 这与 Stevenson 等^[30]的结论相一致。Boulesteix^[31]和 Kochawattana^[32]等证明了烧结温度在 1525~1850℃ 时晶粒生长动力学符合立方指数规律, 而本实验的烧结温度正好在此温度区间, 这也进一步验证了本实验结果的正确性。球磨转速为 70、90、130 和 170 r/min 得到的混合粉体制备的陶瓷样品在 1550℃ 烧结的晶粒生长速率常数 k 分别为: 2.32×10^{-22} 、 1.02×10^{-22} 、 9.83×10^{-23} 和 $2.13 \times 10^{-22} \text{ m}^3/\text{s}$ 。从晶粒生长速率常数 k 可以看出, 球磨转速为 70 r/min 得到的混合粉体在 1550℃ 烧结过程中具有较大的晶粒生长速率常数, 即晶粒长大较快。这是由于球磨转速较低时, 混合粉体内的团聚颗粒没有被充分破碎, 在烧结过程中, 团聚颗粒首先发生烧结并快速长大, 这与图 9 所示趋势符合, 而在 1550℃ 烧结时, 其致密化程度较低, 但是晶粒生长常数却较大, 导致烧结样品内残留部分大气孔, 最终降低样品的光学性能。当球磨转速为 170 r/min 时,

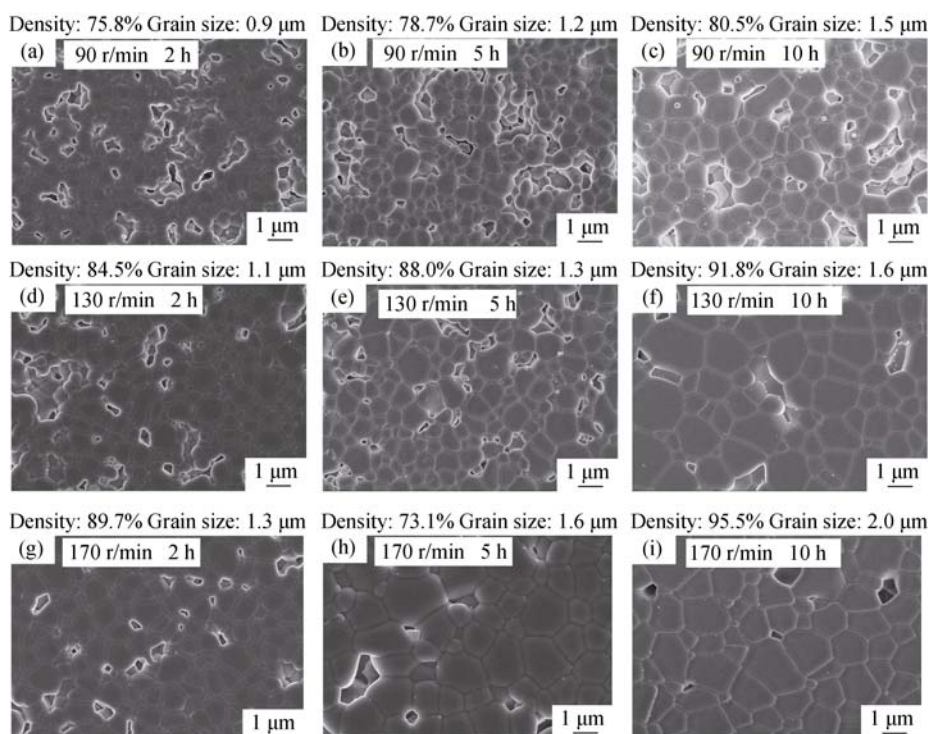


图 9 不同球磨转速所得混合粉体在 1550℃真空烧结不同时间所得陶瓷样品的表面形貌

Fig. 9 SEM micrographs of ceramics sintered at 1550℃ for different time from powder mixtures ball milled at different speeds

高速球磨使得混合粉体的缺陷高、活性大,从而导致烧结过程中晶粒快速长大。

图10为不同转速球磨所得混合粉体在 $1760^{\circ}\text{C}\times 50\text{ h}$ 真空烧结后陶瓷样品腐蚀后表面形貌,从图中可以看出,随着球磨转速的增加,气孔逐渐减少,直到达到完全致密。低球磨转速(70和90 r/min)得到的混合粉体起始颗粒较大,即使在高温下烧结,陶瓷样品仍残留较多的气孔,达不到较高的致密度,这与图4所示的透过率结果相一致,这也验证了烧结前样品的原始颗粒尺寸对于后续烧结过程有显著影响。球磨转速为130 r/min得到的混合粉体制备的陶瓷样品中没有明显的气孔,且晶粒大小均匀(平均晶粒尺寸约为 $22\text{ }\mu\text{m}$)。球磨转速为170 r/min时,Nd:YAG陶瓷中存在的富铝第二相可能会使样品机械抛光时容易形成凹坑(如图10(d)所示)。

3 结论

以商业氧化物粉体为原料,TEOS(正硅酸乙酯)和MgO为烧结助剂,采用固相反应法制备1.0at%Nd:YAG透明陶瓷,重点研究了球磨转速对混合粉体特性、陶瓷烧结致密化行为、显微结构和光学透过率的影响规律。结果表明:随着球磨转速的增加,粉体的破碎程度、混合效果和烧结活性均有效提高,陶瓷烧结时气孔可以更好地排除,并获得均匀致密的结构。过高的球磨转速会在混合粉体中引入氧化铝杂质,并在陶瓷烧结体中形成富铝第二相,从而降低样品的光学透过率。采用合理的球磨工艺(130 r/min \times 10 h),真空烧结($1760^{\circ}\text{C}\times 50\text{ h}$)

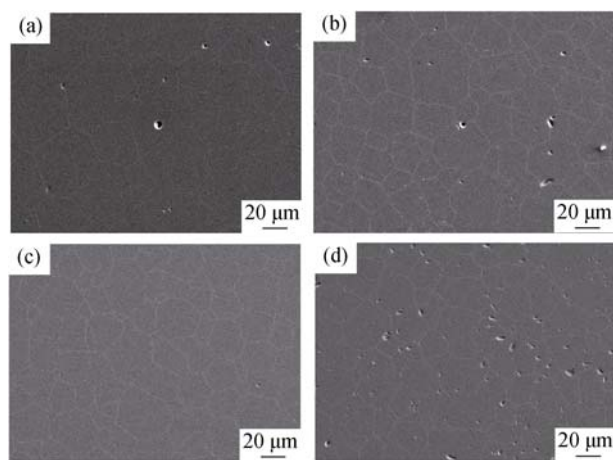


图10 不同转速球磨所得混合粉体在 $1760^{\circ}\text{C}\times 50\text{ h}$ 真空烧结后陶瓷样品腐蚀后表面形貌

Fig. 10 EPMA micrographs of ceramics sintered at 1760°C for 50 h from powder mixtures ball milled at different speeds (a) 70 r/min; (b) 90 r/min; (c) 130 r/min; (d) 170 r/min

所得Nd:YAG陶瓷的显微结构均匀致密,平均晶粒尺寸约为 $22\text{ }\mu\text{m}$,样品在1064 nm和400 nm处的直线透过率分别为83%和80.9%。

参考文献:

- [1] IKESUE A, AUNG Y L, TAIRA T, *et al.* Progress in ceramic lasers. *Annu. Rev. Mater. Res.*, 2006, **36**: 397–429.
- [2] IKESUE A, AUNG Y L. Ceramic laser materials. *Nat. Photonics*, 2008, **2**(12): 721–727.
- [3] LI J, PAN Y B, ZENG Y P, *et al.* The history, development, and future prospects for laser ceramics: a review. *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.*, 2013, **39**: 44–52.
- [4] YAGI H, YANAGITANI T, TAKAICHI K, *et al.* Characterizations and laser performances of highly transparent Nd³⁺: Y₃Al₅O₁₂ laser ceramics. *Opt. Mater.*, 2007, **29**(10): 1258–1262.
- [5] IKESUE A, FURUSATO I, KAMATA K. Fabrication of polycrystalline, transparent YAG ceramics by a solid-state reaction method. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1995, **78**(1): 225–228.
- [6] LU J R, UEDA K, YAGI H, *et al.* Neodymium doped yttrium aluminum garnet(Y₃Al₅O₁₂) nano-crystalline ceramics—a new generation of solid state laser and optical materials. *J. Alloys Compd.*, 2002, **341**(1–2): 220–225.
- [7] BOULON G. Fifty years of advances in solid-state laser materials. *Opt. Mater.*, 2012, **34**(3): 499–512.
- [8] LI X D, LI J G, XIU Z M, *et al.* Transparent Nd: YAG ceramics fabricated using nanosized γ -alumina and yttria powders. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2009, **92**(1): 241–244.
- [9] TANG F, CAO Y G, HUANG J Q, *et al.* Fabrication and laser behavior of composite Yb:YAG ceramic. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2012, **95**(1): 56–59.
- [10] ZHANG W, LU T, MA B, *et al.* Improvement of optical properties of Nd: YAG transparent ceramics by post-annealing and post hot isostatic pressing. *Opt. Mater.*, 2013, **35**(12): 2405–2410.
- [11] CHEN J C, LI J, XU J L, *et al.* 4350 W quasi-continuous-wave operation of a diode face-pumped ceramic Nd: YAG slab laser. *Opt. Laser Technol.*, 2014, **63**: 50–53.
- [12] LEE S H, KOCHAWATTANA S, MESSING G L, *et al.* Solid-state reactive sintering of transparent polycrystalline Nd: YAG. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2006, **89**(6): 1945–1950.
- [13] LI J, WU Y S, PAN Y B, *et al.* Fabrication, microstructure and properties of highly transparent Nd:YAG laser ceramics. *Opt. Mater.*, 2008, **31**(1): 6–17.
- [14] SERANONI M, PIANCASTELLI A, COSTA A L, *et al.* Improvements in the production of Yb:YAG transparent ceramic materials: spray drying optimization. *Opt. Mater.*, 2012, **34**(6): 995–1001.
- [15] LIU W B, ZHANG W X, LI J, *et al.* Synthesis of Nd: YAG pow-

- ders leading to transparent ceramics: the effect of MgO dopant. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2011, **31(4)**: 653–657.
- [16] LI J, CHEN F, LIU W B, *et al.* Co-precipitation synthesis route to yttrium aluminum garnet (YAG) transparent ceramics. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2012, **32(11)**: 2971–2979.
- [17] LV Y H, ZHANG W, LIU H, *et al.* Synthesis of nano-sized and highly sinterable Nd: YAG powders by the urea homogeneous precipitation method. *Powder Technol.*, 2012, **217**: 140–147.
- [18] CHEN X T, LU T C, WEI N, *et al.* Effect of ball-milling granulation with PVB adhesive on the sinterability of co-precipitated Yb: YAG nanopowders. *J. Alloys Compd.*, 2014, **589**: 448–454.
- [19] LI J, LIU W B, JIANG B X, *et al.* Synthesis of nanocrystalline yttria powder and fabrication of Cr, Nd:YAG transparent ceramics. *J. Alloys Compd.*, 2012, **515**: 49–56.
- [20] LIU B L, LI J, IVANOV M, *et al.* Solid-state reactive sintering of Nd:YAG transparent ceramics: the effect of Y_2O_3 powders pretreatment. *Opt. Mater.*, 2014, **36(9)**: 1591–1597.
- [21] LI J, LIU J, LIU B L, *et al.* Influence of heat treatment of powder mixture on the microstructure and optical transmission of Nd:YAG transparent ceramics. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2014, **34(10)**: 2497–2507.
- [22] EPICIER T, BOULON G, ZHAO W, *et al.* Spatial distribution of the Yb^{3+} rare earth ions in $Y_3Al_5O_{12}$ and Y_2O_3 optical ceramics as analyzed by TEM. *J. Mater. Chem.*, 2012, **22**: 18221–18229.
- [23] STEVENSON A J, KUPP E R, MESSING G L. Low temperature, transient liquid phase sintering of B_2O_3 - SiO_2 -doped Nd:YAG transparent ceramics. *J. Mater. Res.*, 2011, **26(09)**: 1151–1158.
- [24] YANG H, QIN X P, ZHANG J, *et al.* Fabrication of Nd:YAG transparent ceramics with both TEOS and MgO additives. *J. Alloys Compd.*, 2011, **509(17)**: 5274–5279.
- [25] GUO W, CAO Y G, HUANG Q F, *et al.* Fabrication and laser behaviors of Nd:YAG ceramic microchips. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2011, **31(13)**: 2241–2246.
- [26] BA X W, LI J, ZENG Y P, *et al.* Transparent $Y_3Al_5O_{12}$ ceramics produced by an aqueous tape casting method. *Ceram. Int.*, 2013, **39(4)**: 4639–4643.
- [27] GE L, LI J, ZHOU Z W, *et al.* Fabrication of composite YAG/Nd: YAG/YAG transparent ceramic for planar waveguide laser. *Opt. Mater. Express*, 2014, **4(5)**: 1042–1049.
- [28] FU Y L, LI J, LIU Y, *et al.* Effect of air annealing on the optical properties and laser behavior of Nd:YAG transparent ceramics. *Opt. Mater. Express*, 2014, **4(10)**: 2108–2115.
- [29] LIU J, LIN L, LI J, *et al.* Effects of ball milling time on microstructure evolution and optical transparency of Nd:YAG ceramics. *Ceram. Int.*, 2014, **40**: 9841–9851.
- [30] STEVENSON A J, LI X, MARTINEZ M A, *et al.* Effect of SiO_2 on densification and microstructure development in Nd:YAG transparent ceramics. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2011, **94(5)**: 1380–1387.
- [31] BOULESTEIX R, MAÎTRE A, BAUMARD J F, *et al.* The Effect of silica doping on neodymium diffusion in yttrium aluminum garnet ceramics: implications for sintering mechanisms. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2009, **29(12)**: 2517–2526.
- [32] KOCHAWATTANA S, STEVENSON A, LEE S H, *et al.* Sintering and grain growth in SiO_2 doped Nd:YAG. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2008, **28(7)**: 1527–1534.