

Lu₂O₃-MgO 纳米粉体合成及其复相红外透明陶瓷制备

满鑫¹, 吴南², 张牧^{1,3}, 贺红亮⁴, 孙旭东^{3,5}, 李晓东^{1,3}

(1. 东北大学 材料科学与工程学院, 沈阳 110819; 2. 沈阳大学 机械工程学院, 沈阳 110044; 3. 东北大学 材料各向异性与织构教育部重点实验室, 沈阳 110819; 4. 中国工程物理研究院 流体物理研究所, 冲击波物理与爆轰物理重点实验室, 绵阳 621900; 5. 东北大学 佛山研究生院, 佛山 528311)

摘要: 细化陶瓷微观结构至纳米级, 可以减少光的散射损失, 为开发新型光学陶瓷提供了一种有效的方法。本研究采用溶胶-凝胶法合成粉体, 结合热压烧结工艺制备出光学性能优异的新型 Lu₂O₃-MgO 纳米复合陶瓷, 研究了粉体合成条件及热压烧结工艺对样品微观结构的影响, 并对计算的理论透过率与样品的实际透过率进行了比较。研究表明: 采用优化后工艺制备的 Lu₂O₃-MgO 陶瓷具有均匀的相域分布, 晶粒尺寸约为 123 nm, 3~5 μm 波段的透过率高达 84.5%~86.0%, 接近理论透过率; 维氏硬度为 12.2 GPa, 断裂韧性为 2.89 MPa·m^{-1/2}, 抗弯强度达到 (221±12) MPa, 是一种潜在的红外透明窗口材料。

关键词: 溶胶-凝胶法; 热压烧结; Lu₂O₃-MgO; 纳米复合陶瓷; 红外窗口材料

中图分类号: TQ174 文献标志码: A

Lu₂O₃-MgO Nano-powder: Synthesis and Fabrication of Composite Infrared Transparent Ceramics

MAN Xin¹, WU Nan², ZHANG Mu^{1,3}, HE Hongliang⁴, SUN Xudong^{3,5}, LI Xiaodong^{1,3}

(1. School of Materials Science and Engineering, Northeastern University, Shenyang 110819, China; 2. School of Mechanical Engineering, Shenyang University, Shenyang 110044, China; 3. Key Laboratory for Anisotropy and Texture of Materials (Ministry of Education), Northeastern University, Shenyang 110819, China; 4. National Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics, Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China; 5. Foshan Graduate School, Northeastern University, Foshan 528311, China)

Abstract: Refining ceramic microstructures to nanometric range to minimize light scattering provides an effective methodology for developing novel optical ceramic materials. In this study, we reported the fabrication and properties of a new nanocomposite optical ceramic of Lu₂O₃-MgO by using nano powders synthesized *via* Sol-Gel method and hot-pressing sintering technology. Influence of powder synthesis conditions and hot-pressing sintering process on the microstructure of the sample was investigated, and the theoretical transmittance of the sample was calculated and compared with the measured transmittance. The results show that the Lu₂O₃-MgO ceramic fabricated by optimizing process exhibits a homogeneous phase domain distribution, a fine-grain size of 123 nm, a high transmittance of 84.5%~86.0% over the 3~5 μm wavelength range, close to the theoretical transmittance, and enhanced hardness value of 12.2 GPa, toughness value of 2.89 MPa·m^{-1/2} and bending strength value of (221±12) MPa, indicating potential

收稿日期: 2021-03-11; 收到修改稿日期: 2021-04-27; 网络出版日期: 2021-05-10

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFB0310300); 教育部基本科研业务费(N180212009); 国家自然科学基金(51872033) National Key R&D Program Project(2017YFB0310300); The Special Fund for Basic Research in Central Universities (N180212009); National Natural Science Foundation of China(51872033)

作者简介: 满鑫(1995-), 男, 硕士研究生. E-mail: mxin0614@163.com

MAN Xin(1995-), male, Master candidate. E-mail: mxin0614@163.com

通信作者: 李晓东, 教授. E-mail: xdli@mail.neu.edu.cn

LI Xiaodong, professor. E-mail: xdli@mail.neu.edu.cn

application in infrared transparent window material.

Key words: Sol-Gel method; hot-pressing sintering; $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$; nano-composites; infrared window materials

在新型光学陶瓷材料制备方面, 细化透明陶瓷的微观结构已经成为了研究热点^[1-2]。研究发现, 当晶粒尺寸远远小于入射光波长时, 不透明或者半透明的陶瓷材料在该入射光波长下就会拥有很高的直线透过率, 这一理论在 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合红外透明陶瓷中得到了很好验证。在该两相系统中, 由于存在钉扎效应, 互不固溶的两相相互抑制彼此晶粒长大, 从而得到了平均晶粒尺寸为 150 nm 的 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合陶瓷, 其红外波长的透过率达到 82%, 优异的红外透过性能及机械性能使其优于其它任何一种单相红外透明陶瓷^[3]。

很显然, 在透明陶瓷的制备过程中, 采用晶粒纳米化的途径能扩大材料的选材范围, 并拓展它们的应用。为此, 发展一种新型的、具有独特相组成的透明陶瓷意义重大。在先前的研究中, 本课题组开发的新型 $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合陶瓷, 具有优异的红外透过及机械性能, 扩大了红外窗口材料的选材范围^[4]。 Lu_2O_3 作为一种稀土倍半氧化物, 属于立方晶系, 具有光学各向同性、高的熔点及热导率、低的有效声子能量及热膨胀系数, 在照明、激光及闪烁体等领域有着良好的应用前景^[5-7]。

此外, 在材料高温高压物理特性、力学响应、相变和物态方程等的冲击波实验研究中, 透明窗口的冲击阻抗应当与受冲击样品尽量保持一致(冲击阻抗是指介质密度与冲击波速度的乘积, 所以要想保证窗口材料阻抗与受冲击待测样品的阻抗一致, 就要保证两者密度接近), 以减少应力波在样品-窗口截面上的反射对样品高压状态的影响, 提高温度和速度的测量精度和置信度。常用的窗口材料有单晶 LiF (2.65 g/cm^3) 和单晶蓝宝石 (3.98 g/cm^3), 因为它们密度较低, 仅适用于测量低密度样品, Lu_2O_3 因其密度高达 9.42 g/cm^3 , 有望解决高密度材料测量的问题^[8]。此外, 在制备多晶复合陶瓷过程中可以通过调节元素的化学计量比及组分, 制备出具有不同初始密度和冲击阻抗的窗口材料, 有望针对不同的待测样品材料定制与冲击阻抗相匹配的窗口材料。因此, $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合红外透明陶瓷是极具应用前景的冲击波实验窗口材料。

本研究采用溶胶-凝胶法合成了 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合粉体, 研究了前驱体煅烧温度对粉体性能的影响。随后, 通过热压烧结技术制备光学性能优异的 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合陶瓷, 重点探讨了烧结温

度、升温速率和退火温度对样品微观结构的影响。

1 实验方法

1.1 制备粉体

以国药集团化学试剂有限公司制造的 Lu_2O_3 ($\geq 99.999\%$)、 MgO ($\geq 98\%$) 和一水合柠檬酸(优级纯)为原料, 分别配制 0.5 mol/L 的 $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$ 溶液、1 mol/L 的 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ 溶液和 1 mol/L 的柠檬酸溶液。根据最终产物 Lu_2O_3 与 MgO 体积比为 50 : 50, 分别称取一定量的 $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$ 和 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ 溶液置于烧杯中, 按照金属阳离子与柠檬酸摩尔比为 1 : 1.5, 将适量柠檬酸溶液加入至上述混合溶液中, 并在常温下搅拌一定时间后加入适量乙二醇, 然后将该混合溶液在 80 °C 下搅拌 5 h, 得到无色透明溶胶。将制备好的溶胶放入干燥箱中烘干 2 h 得到前驱体粉末, 再将前驱体放入马弗炉中在 600 °C 下煅烧 10 h 获得纳米复合粉体。最后将获得的粉末在无水乙醇中球磨 24 h, 对球磨后的浆料进行烘干过筛处理。

1.2 制备纳米复合陶瓷

采用钢膜双向压制方式将得到的 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 粉体压制成两种不同形状的陶瓷生坯, 第一种为 $\phi 25 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的圆形生坯; 第二种为 $50 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ 的长方体生坯。将圆形生坯放入石墨模具中, 在不同的烧结温度 (1200~1400 °C) 及升温速率 (15~30 °C/min) 下进行热压烧结, 施加压力 50 MPa, 保温时间 0.5 h, 烧结后的样品在不同温度 (1100~1200 °C) 下进行退火, 对退火后的样品进行磨抛处理。将长方体生坯放入石墨模具中, 以优化后的热压及退火条件对其进行热压烧结及退火处理, 将得到的样品切割成 $3 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 36 \text{ mm}$, 最后对其进行磨抛处理。

1.3 样品表征

采用差热/热重分析仪 (DTA/TG, SETSYS Evolution-16, SETARAM) 测定前驱体的热分解行为; 采用 X 射线衍射 (XRD, PW3040/60, 日本理学株式会社) 进行物相表征; 通过谢乐公式计算粉体的平均晶粒尺寸, 记为 D_{XRD} , 具体公式如式(1)所示:

$$D_{\text{XRD}} = \frac{K\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (1)$$

式中, D_{XRD} 为晶粒尺寸, 单位 nm; λ 为入射线的波长,

单位 nm; β 为半峰宽, 记为 rad; θ 为衍射角的一半; K 为常数(0.89)。

采用比表面测试仪(BET, TriStar II 3020, Micro-metric Instrument)测定粉体的比表面积, 并通过式(2)计算出样品的平均颗粒尺寸, 记为 D_{BET} :

$$D_{\text{BET}} = \frac{6000}{\rho s} \quad (2)$$

式中, ρ 为样品密度, 单位 g/cm³; s 为粉体的比表面积, 单位为 m²/g。

团聚因子 ϕ 是表示粉体团聚的物理量, 计算公式如式(3)所示:

$$\phi = \frac{D_{\text{BET}}}{D_{\text{XRD}}} \quad (3)$$

采用 Archimedes 法测定陶瓷样品的密度; 采用场发射扫描电子显微镜(FE-SEM, JSM-7001F, 日本电子株式会社)观察样品形貌, 并采用截线法计算其平均晶粒尺寸(每个样品至少截取 200 个晶粒); 使用傅立叶变换红外光谱仪(FT-IR, Nicolet iS5, 美国 TFS 公司)测量红外透过率。

采用维氏显微硬度计(401MVD, 美国沃伯特公司)测量样品的硬度及断裂韧性, 应用载荷力 1 kg, 保压时间 10 s(每个样品测 10 个点, 最后取其平均值)。维氏硬度及断裂韧性计算公式分别如式(4)和式(5)所示:

$$Hv = \frac{P}{s} = \frac{2P \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)}{d^2} = 1.8544 \frac{P}{d^2} \quad (4)$$

式中, Hv 表示维氏硬度, 单位 GPa; P 为载荷, 单位 N; S 为压痕凹面面积, 单位为 mm²; θ 为金刚石压头对面角(136°); d 为压痕对角线的平均长度, 单位为

$$\text{mm}, d = \sum_{i=1}^n \frac{1}{n} 2a_n。$$

$$K_{\text{IC}} = 0.016 \left(\frac{l}{a}\right)^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{E}{H}\right)^{\frac{2}{3}} P c^{\frac{3}{2}} \quad (5)$$

式中, l 为裂纹长度, 单位 mm; a 为压痕对角线半长, 单位 mm; $c=l+a$; H 为被测材料的硬度, 单位 MPa; P 为载荷, 单位 N; E 为材料的弹性模量。

采用万能试验机(CMT-5105, 美特斯工业系统(中国)有限公司)测量样品的抗弯强度, 支点跨距设定为 24 mm, 压头加载速率为 0.5 mm/min, 每组试样数量为 10 个, 最后取其平均值。抗弯强度计算公式如式(6)所示:

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2bh^2} \quad (6)$$

式中, σ_f 为抗弯强度, 单位 MPa; L 为支点跨距, 单

位 mm; b 为试样宽度, 单位 mm; h 为试样厚度, 单位 mm。

2 结果与讨论

2.1 Lu₂O₃-MgO 纳米复合粉体的合成

图 1 为 240 °C 干燥后的前驱体在空气气氛下的热分解行为, 由 TG 曲线可知, 样品主要有三步失重过程: 第一步从室温到 250 °C, 主要是前驱体中残余水分的挥发所致, DSC 曲线上在 75 °C 处出现了吸热峰; 第二步从 250 °C 到 400 °C, DSC 曲线上在 331 °C 处出现了放热峰, 这是由有机中间产物的分解导致的; 第三步从 400 °C 到 600 °C, DSC 曲线在 507 °C 处出现了尖锐的放热峰, 这是由于前驱体中残留有机物进一步分解和氧化物形成所致。图 2 所示的 XRD 分析结果也证实了前驱体在 500 和 600 °C 空气气氛下煅烧后的物相组成为立方 Lu₂O₃ 和立方 MgO。

图 2 显示了粉体在不同煅烧温度下的物相组成, 所有样品的衍射峰完全与标准卡片 PDF43-1021 与 PDF45-0946 一致, 说明合成的纳米复合粉体由立方相 Lu₂O₃ 和立方相 MgO 组成。从图 2 中可以看出, 煅烧温度影响了衍射峰的强度及半高宽, 随着煅烧温度从 400 °C 升高到 700 °C, 衍射峰的强度逐渐增强, 半高宽从 1.104° 减小至 0.77°, 尖锐化趋势明显。衍射峰强度及半高宽的变化暗示煅烧温度对 Lu₂O₃-MgO 纳米粉体的性能有较大影响。

制备相域分布均匀、性能优异的纳米复合材料的首要条件便是合成低团聚的纳米复合粉体。Muoto 等^[9-11]认为纳米复合粉体的团聚程度直接影响了烧结后纳米复合陶瓷的晶粒尺寸及相域均匀性, 他们通过改善初始纳米粉体的团聚现象, 制备出晶粒细小、两相相域分布均匀、性能优异的 Y₂O₃-MgO

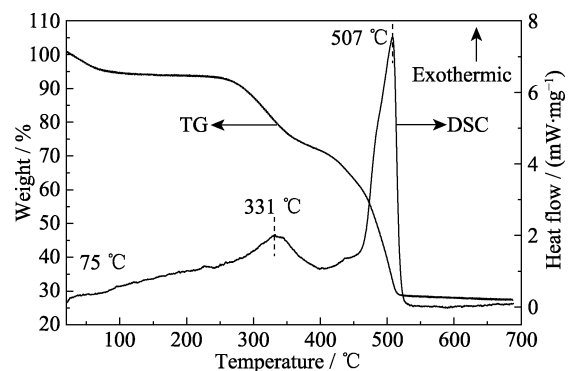


图 1 前驱体泡沫的热分析曲线

Fig. 1 Thermal analysis curves of precursor foam

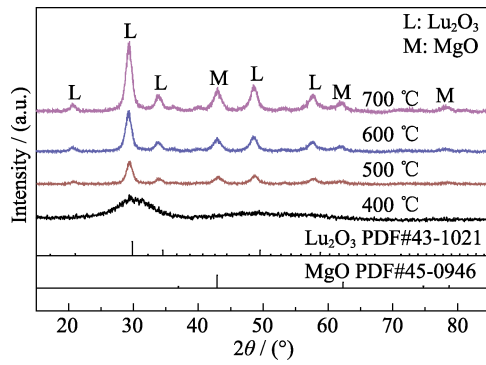


图 2 不同温度煅烧粉体的 XRD 图谱

Fig. 2 XRD patterns of powders calcined at different temperatures

及 ZrO_2 -MgO 纳米复合陶瓷。本课题组先前的研究也证明了抑制初始纳米粉体的团聚可制备出光学及力学性能优异的 Gd_2O_3 -MgO 纳米复合陶瓷^[12]。

表 1 显示了所有样品的比表面积、颗粒尺寸、晶粒尺寸及团聚因子。随着煅烧温度从 400 °C 升高到 700 °C，样品的晶粒尺寸逐渐增大。然而团聚因子与晶粒尺寸的变化趋势相反，随着温度从 400 °C 升高到 600 °C，团聚因子从 2.21 减小至 1.95，说明煅烧温度升高有助于改善纳米粉体的团聚程度；当煅烧温度继续升高至 700 °C，团聚因子又增加至 2.08，说明过高的煅烧温度会加剧粉体的团聚程度。结合图 1 结果，推断出溶胶-凝胶法合成的纳米复合粉体的团聚程度与前驱体中残留的有机物有关，残留的有机物会形成大量的网状结构，从而加剧粉体团聚。从 TG 曲线可以看出，前驱体在 600 °C 以

表 1 不同煅烧温度合成粉体的比表面积、颗粒尺寸、晶粒尺寸及团聚因子

Table 1 Grain size and agglomeration factor ϕ of powders at different calcination temperatures

Temperature/°C	$S_{BET}/(m^2 \cdot g^{-1})$	D_{BET}/nm	D_{XRD}/nm	ϕ
400	58.2	15.9	7.2	2.21
500	54.3	17.0	8.6	1.98
600	51.1	18.1	9.3	1.95
700	41.9	22.0	10.6	2.08

上无明显失重，表明前驱体中的有机物分解完全，网状结构被破坏，从而改善了纳米粉体的团聚程度。

2.2 Lu_2O_3 -MgO 纳米复合陶瓷的制备

图 3(a~e)为不同温度热压烧结的 Lu_2O_3 -MgO 纳米复合陶瓷退火后的微观形貌，由于质厚衬度的差异，亮的区域为 Lu_2O_3 ，暗的区域为 MgO。从图 3 中可以看出，随着烧结温度从 1200 °C 升高至 1400 °C，样品晶粒逐渐长大，经 1200 °C 烧结的样品晶界处存在大量气孔；随着烧结温度升高至 1250 °C，晶界处气孔明显减少，但仍有少量气孔存在于三叉晶界上；当烧结温度继续升高至 1300 °C，样品已接近完全致密化，晶界处无明显气孔存在；随着烧结温度进一步升高至 1350 °C 及 1400 °C，虽然样品具有较高的致密化程度，但晶粒粗化现象明显。图 3(f) 统计了不同烧结温度下样品的相对密度及平均晶粒尺寸，两者都是影响样品红外透过率的主要因素。当样品相对密度较低时，气孔的存在会造成入射光

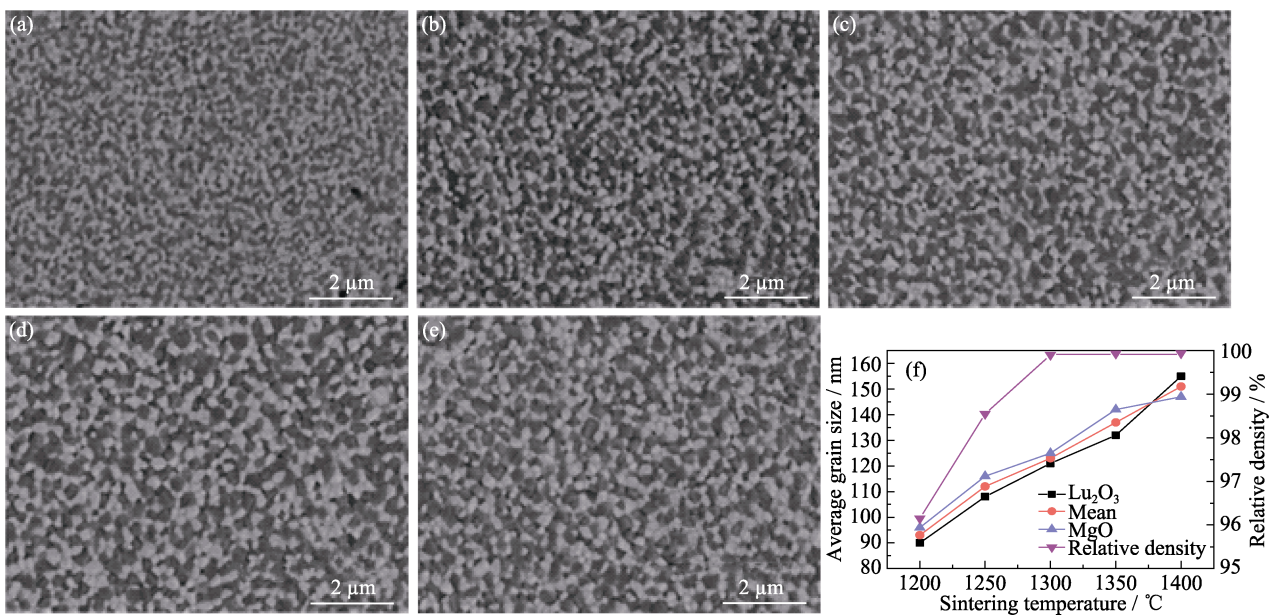


图 3 不同温度烧结样品的表面微观形貌、相对密度及平均晶粒尺寸

Fig. 3 SEM images, relative densities and average grain sizes of the samples sintered at different temperatures

(a) 1200 °C; (b) 1250 °C; (c) 1300 °C; (d) 1350 °C; (e) 1400 °C; (f) Relative densities and average grain sizes of the samples sintered at different temperatures

大量的散射损失。此外, 气孔与 Lu₂O₃、MgO 之间折射率的差异也会造成入射光的损失, 从而降低样品的光学性能。当样品的相对密度较高时, 晶粒尺寸是影响样品红外透过率的主要因素。据报道^[13], 当陶瓷样品达到完全致密化时, 平均晶粒尺寸小于入射光波长的 1/14 时, 样品在该波长下就可以实现透明。Krell 等^[14]制备的致密 Al₂O₃ 陶瓷的晶粒尺寸小于 500 nm, 在 650 nm 处的直线透过率达到 60%。故在制备纳米复合陶瓷时, 相对密度和晶粒尺寸之间存在一个平衡, 在样品高致密化的前提下, 要保证晶粒尺寸的最小化。因此, 本研究中 1300 °C 为最佳的热压温度。

图 4 为不同热压升温速率烧结的样品的微观形貌、相对密度及平均晶粒尺寸, 当升温速率为 15 °C/min 时, 样品接近完全致密化, 但平均晶粒尺寸较大, 达到 153 nm, 且相域均匀性不佳; 当提高升温速率至 20 °C/min 时, 样品相对密度变化不大, 但平均晶粒尺寸减小至 126 nm, 同时相域均匀性得到了明显改善; 继续增大升温速率至 30 °C/min 时, 样品晶粒尺寸虽有减小, 但其相对密度较低, 这是因为升温速率过快, 晶粒缺少足够的时间长大, 样品本身也缺少足够的时间来完成致密化烧结。本研究与 Kim 等^[15]的实验结果相一致, 他们发现在采用 SPS 工艺制备 Al₂O₃ 透明陶瓷时, 过快的升温速率会导致陶瓷相对密度的下降。此外, 热压或 SPS 烧结期间, 由于使用石墨模具, 过快的升温速率会导致样品出现严重的碳污染现象, 在随后的退火除碳过程中, 大量的碳与氧气结合生成 CO₂, 随着 CO₂ 的排出, 就会在晶界处滞留大量气孔, 从而导致样品相对密度的下降^[16]。综合考虑样品的相对密度及晶粒尺寸, 本研究最佳的升温速率为 20 °C/min。

图 5 为不同温度退火样品的微观形貌、相对密度及平均晶粒尺寸, 随着退火温度升高, 样品的相对密度及晶粒尺寸增大。当退火温度为 1100 °C 时, 相对密度较低, 仅为 98.8%, 晶粒尺寸为 110 nm; 随着退火温度升高至 1150 °C 时, 相对密度增大至 99.9%, 接近完全致密化, 晶粒尺寸略有增大; 当进一步升高退火温度至 1200 °C 时, 样品的相对密度较前者略有增大, 但晶粒粗化现象明显, 说明高温退火不利于实现纳米复合陶瓷晶粒纳米化。因此, 1150 °C 为本研究的最佳退火温度。

在 Lu₂O₃-MgO 二元系统中, 将 MgO 当作散射粒子, Lu₂O₃ 当作基体, 根据 Rayleigh、Mie 散射理论及 Beer-Lambert 定律, 来计算样品的理论直线透过率, 如式(7)所示^[17-19]:

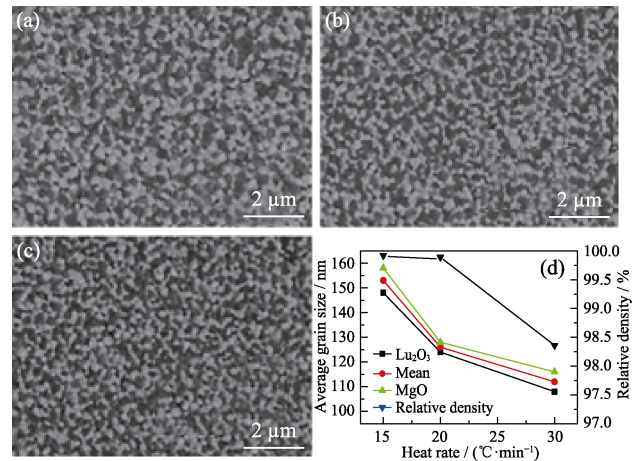


图 4 不同升温速率烧结的样品的微观形貌、相对密度及平均晶粒尺寸

Fig. 4 SEM images, relative densities and average grain sizes of the samples sintered at different heating rates

(a) 15 °C/min; (b) 20 °C/min; (c) 30 °C/min; (d) Relative densities and average grain sizes of the samples sintered at different heating rates

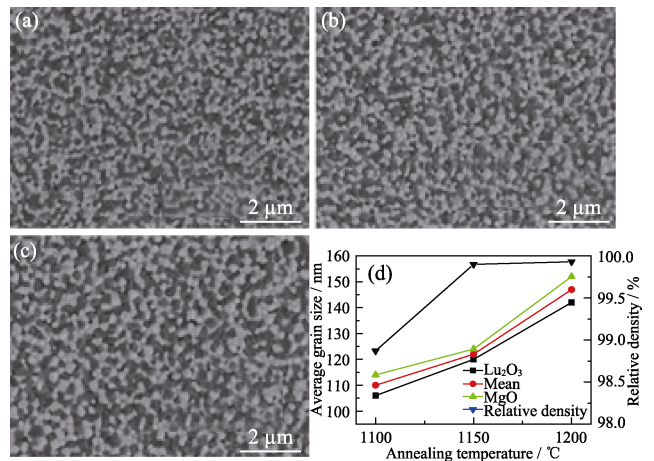


图 5 不同温度退火样品的微观形貌、相对密度及平均晶粒尺寸

Fig. 5 SEM images, relative densities and average grain sizes of the samples annealed at different temperatures

(a) 1100 °C; (b) 1150 °C; (c) 1200 °C; (d) Relative densities and average grain sizes of the samples annealed at different temperatures

$$T = (1 - R)e^{-Q_{sca}d} = \frac{2n}{n^2 + 1} e^{-\frac{8\left(\frac{2\pi r}{\lambda}\right)^4 \left(\frac{n_1^2 - n_2^2}{n_1^2 + 2n_2^2}\right)^2 d} \quad (7)$$

式中, T 为理论直线透过率; R 为陶瓷样品的总反射系数; Q_{sca} 为散射系数; d 为样品厚度; r 为散射粒子的半径; λ 为入射光的波长; n_1 为散射粒子的折射率; n_2 为周围介质的折射率。

此外, 样品折射率与波长之间存在如下关系^[20]:

$$n(\lambda)^2 = A_0 + A_1\lambda^2 + A_2\lambda^{-2} + A_3\lambda^{-4} + A_4\lambda^{-6} + A_5\lambda^{-8} + \dots \quad (8)$$

式中, λ 单位为入射光波长, 系数 $A_0 - A_5$ 为常数。

MgO 折射率 n_1 与 λ 关系^[21]如下:

$$n_1 = 1.7200516 + \frac{0.00561194}{(\lambda^2 - 0.028)^2} - 0.0030946\lambda^2 - 0.00000961\lambda^4 \quad (9)$$

Lu_2O_3 折射率 n_2 与 λ 关系^[22]如下:

$$\frac{1}{n_2^2 - 1} = -\frac{6.6 \times 10^{-15}}{\lambda^2} + 0.3833 \quad (10)$$

结合公式(7~10)计算出 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 复合陶瓷的理论透过率, 并与样品的实测透过率进行比较, 结果如图(6)所示。样品在波长 5 μm 处透过率高达 86%, 接近于理论值, 在 1.5 μm 近红外波段, 透过率接近 70%, 这是因为通过优化粉体合成、热压烧结及退火工艺后, 样品具有较高的相对密度、均匀的相域分布及细小的晶粒尺寸, 从而保证样品具有优异的光学性能。表 2 显示了采用优化后工艺制备的样品的力学性能, 维氏硬度及断裂韧性分别为 12.2 GPa 和 $2.89 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{-1/2}$, 优于已报道的 $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复合陶瓷^[23-24], 抗弯强度为 $(221 \pm 12) \text{ MPa}$ 。

3 结论

溶胶-凝胶法结合热压烧结技术是制备纳米复合陶瓷的有效方法。本研究采用该方法重点研究了

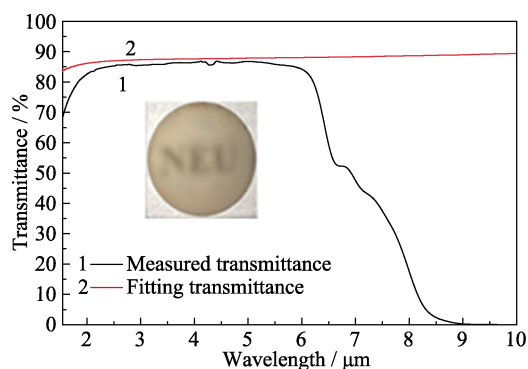


图 6 样品的理论透过率与实际透过率(厚度约 2 mm); 插图
为半透明 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 纳米复相陶瓷实物照片

Fig. 6 Theoretical and actual transmittance of translucent $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ nanocomposite ceramic (thickness $\approx 2 \text{ mm}$)

The inset shows the appearance of translucent $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ nanocomposite ceramic

表 2 样品的力学性能表征

Table 2 Mechanical properties of the sample

Sample	HV hardness /GPa	Fracture toughness /($\text{MPa}\cdot\text{m}^{-1/2}$)	Bending strength /MPa
$\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$	12.2	2.89	(221 ± 12)

粉体合成条件、热压烧结及退火工艺对样品微观结构及光学性能的影响。采用散射理论模型计算了制备的新型 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 光学陶瓷的理论透过率, 并与实测透过率进行比较。主要结论如下:

1)前驱体煅烧温度影响粉体的团聚。当煅烧温度为 600 $^\circ\text{C}$ 时, 粉体团聚程度最小。

2)热压烧结及退火工艺影响样品的微观结构。当煅烧温度为 1300 $^\circ\text{C}$, 升温速率为 20 $^\circ\text{C}/\text{min}$, 压力为 50 MPa, 保温时间为 0.5 h, 退火温度为 1150 $^\circ\text{C}$ 时, 样品具有均匀的相域分布及细小的晶粒尺寸 (123 nm)。

3)采用优化后工艺制备出的 $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ 陶瓷具有优异的红外透过性能, 3~5 μm 波长范围内, 最高透过率可达 86%, 接近理论透过率, 维氏硬度为 12.2 GPa、断裂韧性及抗弯强度分别为 $2.89 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{-1/2}$ 和 $(221 \pm 12) \text{ MPa}$ 。

参考文献:

- [1] LIU W B, KOU H M, LI J, *et al.* Preparation and properties of high light transmittance Nd:YAG transparent ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2008, **23**(5): 1037-1040.
- [2] HMOA B, YJP A, HNK A, *et al.* Effect of powder milling routes on the sinterability and optical properties of transparent Y_2O_3 ceramics. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, **41**(1): 775-780.
- [3] LI J, JIANG N, XU S Q, *et al.* Research progress in infrared transparent MgO- Y_2O_3 nanocomposite ceramics. *Journal of The Chinese Ceramic Society*, 2016, **44**(9): 1302-1314.
- [4] WU N, LI X, LI J G, *et al.* Fabrication of $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ nanocomposite optical ceramics with varied crystallographic modifications of Gd_2O_3 constituent. *Journal of the American Ceramic Society*, 2018, **101**(11): 4887-4891.
- [5] LIU Z, TOCI G, PIRRI A, *et al.* Fabrication and laser operation of Yb: Lu_2O_3 transparent ceramics from co-precipitated nano-powders. *Journal of the American Ceramic Society*, 2019, **102**(12): 7491-7499.
- [6] PERMIN DA, BALABANOV S S, NOVIKOVA A V, *et al.* Fabrication of Yb-doped $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3\text{-La}_2\text{O}_3$ solid solutions transparent ceramics by self-propagating high-temperature synthesis and vacuum sintering. *Ceramics International*, 2019, **45**(1): 522-529.
- [7] YAO W, UEHARA H, TOKITA S, *et al.* LD-pumped 2.8 μm Er: Lu_2O_3 ceramic laser with 6.7 W output power and >30% slope efficiency. *Applied Physics Express*, 2021, **14**(1): 012001-1-4.
- [8] 周显明. LiTaO_3 单晶用作测量 Fe 冲击温度窗口材料可行性的探索. 绵阳: 中国工程物理研究院博士学位论文, 2004.
- [9] MUOTO C K, JORDAN E H, GELL M, *et al.* Phase homogeneity in $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ nanocomposites synthesized by thermal decomposition of nitrate precursors with ammonium acetate additions. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, **94**(12): 4207-4217.
- [10] MUOTO C K, JORDAN E H, GELL M, *et al.* Effects of precursor chemistry on the structural characteristics of $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ nanocomposites synthesized by a combined Sol-Gel/thermal decomposition route. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, **94**(2): 372-381.
- [11] MUOTO C K, JORDAN E H, GELL M, *et al.* Phase homogeneity in MgO-ZrO₂ nanocomposites synthesized by a combined Sol-Gel/thermal decomposition route. *Journal of the American*

- Ceramic Society*, 2010, **93(10)**: 3102–3109.
- [12] WU N, LI X D, ZHANG M, *et al.* Synthesis of nanopowders with low agglomeration by elaborating Φ values for producing Gd₂O₃-MgO nanocomposites with extremely fine grain sizes and high mid-infrared transparency. *Journal of the European Ceramic Society*, 2020, **41(4)**: 2898–2907.
- [13] STEFANIK T, GENTILMAN R, HOGAN P. Nanocomposite optical ceramics for infrared windows and domes. *The International Society for Optical Engineering*, 2007, **6545**: 9.
- [14] KRELL A, BLANK P, MA H, *et al.* Transparent sintered corundum with high hardness and strength. *Journal of the American Ceramic Society*, 2010, **86(1)**: 12–18.
- [15] GOGLIO G, KAUR G, PINHO S L C, *et al.* Glycine-nitrate process for the elaboration of Eu³⁺-doped Gd₂O₃ bimodal nanoparticles for biomedical applications. *European Journal of Inorganic Chemistry*, 2015, **7**: 1243–1253.
- [16] MORITA K, KIM B N, YOSHIDA H, *et al.* Spark-plasma-sintering condition optimization for producing transparent MgAl₂O₄-spinel polycrystal. *Journal of the American Ceramic Society*, 2009, **92(6)**: 1208–1216.
- [17] 李卿. 透明陶瓷的光传输机理及散射模型研究. 武汉: 华中师范大学博士学位论文, 2011.
- [18] APETZ R, BRUGGEN M P B V. Transparent alumina: a light-scattering model. *Journal of the American Ceramic Society*, 2010, **86(3)**: 480–486.
- [19] PEELEN J G J, METSELAAR R. Light scattering by pores in poly-crystalline materials. *Journal of Applied Physics*, 1974, **45(1)**: 216–220.
- [20] KRELL A, HUTZLER T, KLIMKE J. Transmission physics and consequences for materials selection, manufacturing, and applications. *Journal of the European Ceramic Society*, 2009, **29(2)**: 207–221.
- [21] HARRIS D C, CAMBREA L R, JOHNSON L F, *et al.* Properties of an infrared-transparent MgO: Y₂O₃ nanocomposite. *Journal of the American Ceramic Society*, 2013, **96(12)**: 3828–3835.
- [22] MEDENBACH O, DETTMAR D, SHANNON R D, *et al.* Refractive index and optical dispersion of rare earth oxides using a small-prism technique. *Journal of Optics A Pure & Applied Optics*, 2001, **3(3)**: 174–177.
- [23] MA H J, JUNG W K, BAEK C Y, *et al.* Influence of microstructure control on optical and mechanical properties of infrared transparent Y₂O₃-MgO nanocomposite. *Journal of the European Ceramic Society*, 2017, **37(15)**: 4902–4911.
- [24] XU S Q, LI J, LI C Y, *et al.* Infrared-transparent Y₂O₃-MgO nanocomposites fabricated by the glucose Sol-Gel combustion and hot-pressing technique. *Journal of the American Ceramic Society*, 2015, **98(9)**: 2796–2802.