

真空反应烧结制备米级尺寸钇铝石榴石(YAG)透明陶瓷

汪德文^{1,2}, 王俊平^{1,2}, 袁厚呈^{3,4}, 刘章^{3,4}, 周进^{3,4}, 邓佳杰^{1,2},
王鑫^{1,2}, 吴贲华^{3,4}, 章健^{1,2}, 王士维^{1,2}

(1. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 高性能陶瓷和超微结构国家重点实验室, 上海 201899; 2. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 透明陶瓷研究中心, 上海 201899; 3. 江苏铁锚科技股份有限公司, 海安 226602; 4. 江苏省高性能透明防护新材料重点实验室, 海安 226602)

摘要: 透明陶瓷兼具高强度、高硬度和优异的光学性能, 在轻量化透明装甲领域具有重要的应用前景。制备大尺寸和高光学质量透明陶瓷部件是实现其应用的主要挑战。本工作采用国产商业 Al_2O_3 和 Y_2O_3 为起始原料, 通过真空反应烧结工艺制备钇铝石榴石($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, 简称 YAG)透明陶瓷, 突破了大尺寸素坯干压成型与脱黏、真空烧结及光学性能提升等关键技术, 成功研制了低变形量、高光学质量的 YAG 透明陶瓷, 并通过成型和烧结设备的升级改造, YAG 透明陶瓷的最大可制备尺寸达到 1040 mm×810 mm×15 mm, 为后期应用奠定了坚实基础。

关键词: YAG; 大尺寸; 反应烧结法; 透明陶瓷

中图分类号: TQ174 文献标志码: A

Metre-scale $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG) Transparent Ceramics by Vacuum Reactive Sintering

WANG Dewen^{1,2}, WANG Junping^{1,2}, YUAN Houcheng^{3,4}, LIU Zhang^{3,4}, ZHOU Jin^{3,4},
DENG Jiajie^{1,2}, WANG Xin^{1,2}, WU Benhua^{3,4}, ZHANG Jian^{1,2}, WANG Shiwei^{1,2}

(1. State Key Lab of High Performance Ceramics and Superfine Microstructure, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201899, China; 2. Transparent Ceramics Research Center, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201899, China; 3. Jiangsu Tie Mao Technology Co., Ltd, Haian 226602, China; 4. Jiangsu Key Lab of High Performance Transparent Protective New Materials, Haian 226602, China)

Abstract: Transparent ceramic materials have excellent strength, hardness and optical properties, which have important application prospect in light-weight transparent protective armor. However, the preparation of transparent ceramic components with large protection area and high transmittance properties is the main challenge to achieve application. In this work, large-size yttrium aluminum garnet ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, abbreviated as YAG) transparent ceramics with low deformation and excellent optical quality were fabricated by reactive sintering in vacuum using domestic high-purity Al_2O_3 and Y_2O_3 powders as starting materials, and the key technologies including dry pressing, calcining, high-temperature vacuum sintering and optical performance were broken through. In addition, as the upgrading of molding and sintering equipment, the dimension of YAG transparent ceramic was enlarged to 1040 mm×810 mm×15 mm, laying a substantial foundation for future applications.

Key words: YAG; large size; reaction sintering; transparent ceramic

收稿日期: 2023-08-16; 收到修改稿日期: 2023-09-14; 网络出版日期: 2023-10-07

基金项目: 国家自然科学基金(52130207); 南通市“揭榜挂帅”攻坚计划(JB2022001)

National Natural Science Foundation of China (52130207); Unveiling and Hanging Project of Nantong (JB2022001)

作者简介: 汪德文(1990-), 男, 工程师. E-mail: wangdewen@mail.sic.ac.cn

WANG Dewen (1990-), male, engineer. E-mail: wangdewen@mail.sic.ac.cn

通信作者: 章健, 研究员. E-mail: jianzhang@mail.sic.ac.cn; 袁厚呈, 工程师. E-mail: yuanhoucheng@tiemao.cn

ZHANG Jian, professor. E-mail: jianzhang@mail.sic.ac.cn; YUAN Houcheng, engineer. E-mail: yuanhoucheng@tiemao.cn

半透明氧化铝陶瓷自问世以来,经过六十多年的发展,已研制出氧化物和非氧化物等系列透明陶瓷,广泛应用于高强度照明、固体激光、红外探测、透明防护等领域。钇铝石榴石($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, 简称 YAG)透明陶瓷是一类典型的氧化物透明陶瓷材料,具有优异的力学、热学和光学特性^[1-6]。1995 年, Ikesue 博士^[7]研制的 Nd:YAG 透明陶瓷首次实现激光输出,掀起了 YAG 基透明陶瓷的研究热潮。本课题组研究发现, YAG 透明陶瓷具有良好的抗冲击性能,是透明防护的新型候选材料^[8]。

目前,只有少数国家实现了稀土离子(Nd、Yb、Ce 等)掺杂 YAG 透明陶瓷的商业化,应用范围局限于固体激光介质与激光照明,且尺寸小。本课题组针对透明防护应用需求,开展 YAG 透明陶瓷研究。目前,国内 YAG 粉体的商业化制备尚未成功,本研究采用国产 Al_2O_3 和 Y_2O_3 粉体为原料,通过混合、成型、一步真空反应烧结法制备了 YAG 透明陶瓷。2018 年研制的 YAG 透明陶瓷尺寸达到 $220\text{ mm}\times 170\text{ mm}\times 12\text{ mm}$, 直线透过率在 1064 nm 处为 83.6%, 如图 1(a, b)所示。

针对应用需求,中国科学院上海硅酸盐研究所和江苏铁锚科技股份有限公司共同对 YAG 透明陶

瓷的尺寸放大和性能提升进行攻关。通过控制批量化粉体混合过程中 $\text{Y}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ 化学计量比和改善混合均匀性,提升粉体成型流动性,以及研究模压成型过程中布粉方式和模压工艺对素坯的强度和密度均匀性影响规律,实现了大尺寸、小厚度陶瓷素坯的成型。进一步地,通过优化素坯脱黏过程承烧方式和脱黏制度,解决了米级口径薄板陶瓷素坯脱黏的技术难题。并在此基础上,通过研究承烧方式和真空烧结炉的热场均匀性对陶瓷致密化过程的影响,减小陶瓷素坯因收缩产生的摩擦阻力和热应力,成功解决了大尺寸陶瓷素坯烧结实易弯曲、开裂和微结构不均匀的难题。近期,两个单位的技术团队协同将 YAG 透明陶瓷的尺寸放大至 $1040\text{ mm}\times 810\text{ mm}\times 15\text{ mm}$ (如图 1(c)所示),为世界现有报道的最大尺寸,并初步建立系列化 YAG 透明陶瓷产品的小批量生产能力。与 MgAl_2O_4 和 AION 透明陶瓷相比, YAG 透明陶瓷具有相似的力学和光学性能,并具备制备工艺简单(无需复杂且昂贵的热等静压烧结过程)和原料来源广泛等优势。大尺寸 YAG 透明陶瓷的研发成功为我国透明防护应用提供了一种新的候选材料,不仅“防得住”,而且“用得起”,这将极大地推动我国透明防护能力的提升。

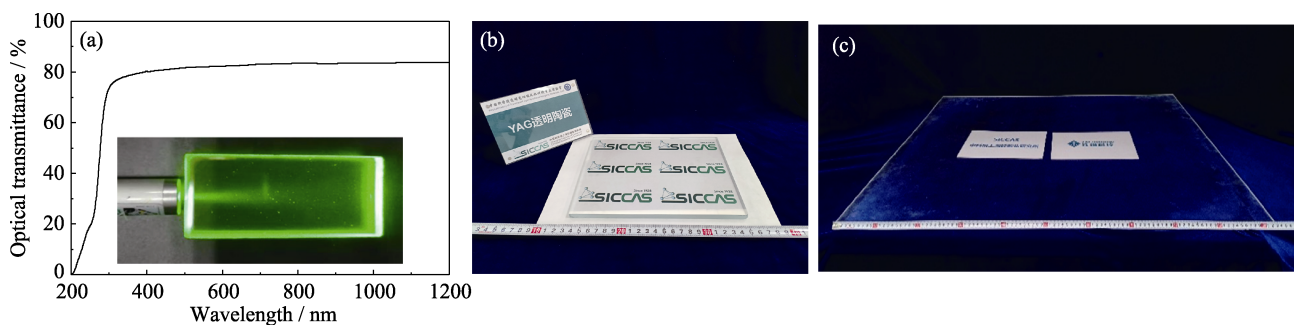


图 1 一步真空烧结制备 YAG 透明陶瓷的透过率曲线(a)、尺寸 $220\text{ mm}\times 170\text{ mm}\times 12\text{ mm}$ (b)和尺寸 $1040\text{ mm}\times 810\text{ mm}\times 15\text{ mm}$ (c)的 YAG 透明陶瓷照片

Fig. 1 Optical transmittance curve of YAG transparent ceramics fabricated from vacuum reactive sintering (a), photographs of YAG ceramic with dimensions of $220\text{ mm}\times 170\text{ mm}\times 12\text{ mm}$ (b) and $1040\text{ mm}\times 810\text{ mm}\times 15\text{ mm}$ (c)

参考文献:

- [1] CHEN F, ZHANG F, WANG J, *et al.* Microstructure and optical properties of transparent aluminum oxynitride ceramics by hot isostatic pressing. *Scripta Materialia*, 2014, **81**: 20.
- [2] ZHANG J Y, CHEN H T, WANG J P, *et al.* Phase transformation process of Tb_2O_3 at elevated temperature. *Scripta Materialia*, 2019, **171**: 108.
- [3] KONG L B, HUANG Y Z, QUE W X, *et al.* Transparent ceramics. Switzerland: Springer International Publishing, 2015.
- [4] WANG S F, ZHANG J, LUO D W, *et al.* Transparent ceramics: processing, materials and applications. *Progress in Solid State Chemistry*, 2013, **41(1/2)**: 20.
- [5] WU S H, ZHAO J S, ZHAO Y J, *et al.* Review on the fabrication and optical performance of ZnS bulk materials. *Infrared Technology*, 2022, **44(5)**: 453.
- [6] NAKAMURA F, KATO T, OKADA G, *et al.* Scintillation and TSL properties of MgF_2 transparent ceramics doped with Eu^{2+} synthesized by spark plasma sintering. *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, **726**: 67.
- [7] IKESUE A, AUNG Y L. Ceramic laser materials. *Nature Photonics*, 2008, **2**: 721.
- [8] CHEN B B, ZHANG X F, DENG J J, *et al.* Residual penetration depth of a projectile into YAG transparent ceramic/glass. *Explosion and Shock Waves*, 2020, **40(8)**: 92.