НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ВЕСТНИК ИНФОРМАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ, МЕХАНИКИ И ОПТИКИ ноябрь-декабрь 2021 Toм 21 № 6 http://ntv.ifmo.ru/ SCIENTIFIC AND TECHNICAL JOURNAL OF INFORMATION TECHNOLOGIES, MECHANICS AND OPTICS November-December 2021 Vol. 21 No 6 http://ntv.ifmo.ru/en/ ISSN 2226-1494 (print) ISSN 2500-0373 (online)

ИНФОРМАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ, МЕХАНИКИ И ОПТИКИ

университет итмо

doi: 10.17586/2226-1494-2021-21-6-872-879 УДК 666.3

# Исследование влияния концентрации оксида магния и отклонения от стехиометрии иттрий-алюминиевого граната на микроструктуру и оптическое пропускание керамики на его основе

# Федор Федорович Малявин<sup>1⊠</sup>, Александр Александрович Кравцов<sup>2</sup>, Виталий Алексеевич Тарала<sup>3</sup>, Марина Сергеевна Никова<sup>4</sup>, Ирина Сергеевна Чикулина<sup>5</sup>, Дмитрий Сергеевич Вакалов<sup>6</sup>, Вячеслав Анатольевич Лапин<sup>7</sup>, Дмитрий Сергеевич Кулешов<sup>8</sup>, Евгений Викторович Медяник<sup>9</sup>

1.2.3.4,5.6,7.8.9 Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация 2.7 Федеральный исследовательский центр Южный научный центр Российской академии наук, Ростов-на-Дону, 344006, Российская Федерация

<sup>1</sup> fedormalyavin@mail.ru<sup>\vee</sup>, https://orcid.org/0000-0002-5255-9346

<sup>2</sup> sanya-kravtsov@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0002-0645-1166

<sup>3</sup> vitaly-tarala@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0001-6688-2681

<sup>4</sup> m-s-shama@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0001-8810-4493

<sup>5</sup> iraaaa@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0002-0871-8776

<sup>6</sup> megadims@gmail.com, https://orcid.org/0000-0001-6788-3811

<sup>7</sup> viacheslavlapin@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0002-1938-4134

<sup>8</sup> kule-dmitry@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0003-4314-1578

<sup>9</sup> miedianik84@mail.ru, https://orcid.org/0000-0002-5947-7810

## Аннотация

**Предмет исследования.** Исследовано влияние концентрации оксида магния на микроструктуру и оптическое пропускание керамики в условиях избытка катионов  $Al^{3+}$  (4,8 мол.%) и  $Y^{3+}$  (2,9 мол.%) в структуре граната, а также стехиометричного соотношения  $Y^{3+}/Al^{3+} = 3/5$ . **Метод.** Образцы оптической керамики получены путем вакуумного спекания компактов, изготовленных из керамических порошков. Порошки-прекурсоры для керамики на основе иттрий-алюминиевого граната с различным соотношением катионов  $Y^{3+}/Al^{3+}$  получены методом двухстадийного химического соосаждения. В качестве спекающей добавки использован оксид магния в концентрации от 0 до 0,2 масс.%. Исследована микроструктура и оптические свойства полученных образцов методами растровой электронной микроскопии, энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии и спектрофотометрии. **Основные результаты.** Показано, что при введении оксида магния в диапазоне концентраций 0–0,2 масс.% микроструктура и оптическая значимость. Получены образцы оптической керамики существенно зависят от стехиометрии иттрий-алюминиевого граната. **Практическая значимость.** Получены образцы оптической керамики существенно зависят от слехиометрии иттрий-алюминиевого граната. **Практическая значимость.** Получены образцы оптической керамики иттрий-алюминиевого граната.

#### Ключевые слова

оптическая керамика, иттрий-алюминиевый гранат, стехиометрия, микроструктура, вакуумное спекание, средний размер зерна

## Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке Совета по грантам Президента Российской Федерации (проект MK-3786.2021.1.3). Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования Северо-Кавказского федерального университета при финансовой поддержке Минобрнауки России, уникальный идентификатор проекта RF----2296.61321X0029 (соглашение № 075-15-2021-687).

Ссылка для цитирования: Малявин Ф.Ф., Кравцов А.А., Тарала В.А., Никова М.С., Чикулина И.С., Вакалов Д.С., Лапин В.А., Кулешов Д.С., Медяник Е.В. Исследование влияния концентрации оксида магния и отклонения от стехиометрии иттрий-алюминиевого граната на микроструктуру и оптическое пропускание керамики на его основе // Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики. 2021. Т. 21, № 6. С. 872–879. doi: 10.17586/2226-1494-2021-21-6-872-879

© Малявин Ф.Ф., Кравцов А.А., Тарала В.А., Никова М.С., Чикулина И.С., Вакалов Д.С., Лапин В.А., Кулешов Д.С., Медяник Е.В., 2021

# Impact of magnesium oxide concentration and yttrium-aluminum garnet stoichiometry deviation on the microstructure and optical transmission of YAG-based ceramics

Fedor F. Malyavin<sup>1⊠</sup>, Alexander A. Kravtsov<sup>2</sup>, Vitaly A. Tarala<sup>3</sup>, Marina S. Nikova<sup>4</sup>, Irina S. Chikulina<sup>5</sup>, Dmitry S. Vakalov<sup>6</sup>, Viacheslav A. Lapin<sup>7</sup>, Dmitry S. Kuleshov<sup>8</sup>, Evgenii V. Medyanik<sup>9</sup>

1,2,3,4,5,6,7,8,9 North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation

<sup>2,7</sup> Federal Research Center the Southern Scientific Centre of the Russian Academy of Sciences, Rostov-on-Don, 344006, Russian Federation

<sup>1</sup> fedormalyavin@mail.ru<sup>\equiv</sup>, https://orcid.org/0000-0002-5255-9346

<sup>2</sup> sanya-kravtsov@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0002-0645-1166

<sup>3</sup> vitaly-tarala@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0001-6688-2681

<sup>4</sup> m-s-shama@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0001-8810-4493

<sup>5</sup> iraaaa@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0002-0871-8776

<sup>6</sup> megadims@gmail.com, https://orcid.org/0000-0001-6788-3811

<sup>7</sup> viacheslavlapin@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0002-1938-4134

<sup>8</sup> kule-dmitry@yandex.ru, https://orcid.org/0000-0003-4314-1578

<sup>9</sup> miedianik84@mail.ru, https://orcid.org/0000-0002-5947-7810

## Abstract

The paper investigates the effect of the magnesium oxide concentration on the ceramics' microstructure and optical transmittance under conditions of excess  $Al^{3+}$  (4.8 mol.%) and  $Y^{3+}$  (2.9 mol.%) cations in the garnet structure, as well as the stoichiometric ratio  $Y^{3+}/Al^{3+} = 3/5$ . Samples of optical ceramics were fabricated by vacuum sintering of compacts obtained from ceramic powders. Precursor powders with different ratios of  $Y^{3+}/Al^{3+}$  cations were synthesized by the method of two-stage coprecipitation. Magnesium oxide was used as a sintering additive in concentrations from 0 to 0.2 wt.%. The microstructure and optical properties of the obtained samples were studied using scanning electron microscopy, energy dispersive X-ray spectroscopy and spectrophotometry techniques. It is shown that with the addition of magnesium oxide in a concentration of 0–0.2 wt.%, the stoichiometry of yttrium-aluminum garnet significantly affects ceramics' optical transmittance and microstructure. Samples of optical ceramics of yttrium-aluminum garnet with a light transmission coefficient of more than 70 % in the visible and near-infrared range were obtained.

## Keywords

optical ceramics, yttrium-aluminum garnet, stoichiometry, microstructure, vacuum sintering, average grain size

## Acknowledgments

This work was financially supported by the Council for Grants of the President of the Russian Federation (project No. MK-3786.2021.1.3). The work was carried out using the equipment of the Center for Collective Use of the North-Caucasus Federal University with financial support from the Ministry of Education and Science of Russia, unique project identifier RF ---- 2296.61321X0029 (agreement No. 075-15-2021-687).

For citation: Malyavin F.F., Kravtsov A.A., Tarala V.A., Nikova M.S., Chikulina I.S., Vakalov D.S., Lapin V.A., Kuleshov D.S., Medyanik E.V. Impact of magnesium oxide concentration and yttrium-aluminum garnet stoichiometry deviation on the microstructure and optical transmission of YAG-based ceramics. *Scientific and Technical Journal of Information Technologies, Mechanics and Optics*, 2021, vol. 21, no. 6, pp. 872–879 (in Russian). doi: 10.17586/2226-1494-2021-21-6-872-879

## Введение

Иттрий-алюминиевый гранат (ИАГ) имеет уникальные оптические и термомеханические свойства и является перспективным материалом для изготовления высокотемпературных прозрачных окон, оптических стекол, линз, светящихся трубок для газоразрядных ламп высокой интенсивности и др. [1, 2]. ИАГ, легированный ионами редкоземельных металлов (Yb<sup>3+</sup>, Nd<sup>3+</sup>, Се<sup>3+</sup> и т. д.), — материал для создания твердотельных лазеров и сцинтилляторов [3, 4]. Керамическая технология получения прозрачных поликристаллических материалов на основе ИАГ, в отличие от традиционной технологии выращивания монокристаллов, является более гибкой и дешевой. Это достигается за счет возможности создания образцов произвольной формы и размера, более высокого уровня и однородности легирования, массовости производства [5-7]. По своим механическим свойствами керамика не уступает моно-

кристаллам [5, 7, 8]. Для получения высокопрозрачной керамики, светопропускание которой сопоставимо с монокристаллами, необходимо обеспечить практически стопроцентную относительную плотность керамического изделия после спекания. Известно, что максимальная плотность оксидной керамики при вакуумном спекании достигается за счет введения спекающих добавок, которые встраиваются в кристаллическую решетку основного вещества, либо образуют жидкую фазу по границам зерен. Добавки создают в кристаллической решетке граната несовершенства в виде точечных дефектов, микроискажений, деформаций, что обеспечивает высокую скорость диффузионных процессов на всех стадиях спекания [9]. Наиболее распространенными и хорошо изученными спекающими добавками для получения высокопрозрачной оптической керамики ИАГ являются SiO<sub>2</sub> [10] и MgO [11], а также их комбинация (SiO<sub>2</sub> + MgO) [12]. Использование кремния приводит к значительному росту зерен при спекании [12], что ухудшает механические свойства керамики ИАГ. Кроме того, кремний значительно снижает эффективность конверсии некоторых ионов, например,  $Cr^{3+} \rightarrow Cr^{4+}$  или  $Yb^{2+} \rightarrow Yb^{3+}$  в ИАГ-керамике в результате компенсации заряда [11, 13]. Данный эффект накладывает ограничения на использование такой керамики в лазерной технике. Например, при создании насыщающихся поглотителей для пассивной модуляции добротности Nd- и Yb-лазеров. Кроме того, оксид магния (MgO) значительно снижает степень агломерации керамических порошков и подавляет рост зерен ИАГ-керамики при спекании [11]. Следовательно, спекающая добавка MgO перспективна для изготовления оптической керамики на основе иттрий-алюминиевого граната. Считается, что механизм действия добавки MgO основан на замещении ионами Mg<sup>2+</sup> ионов Al<sup>3+</sup> в октаэдрической позиции ИАГ [14], в результате образуются вакансии по кислороду [15], что приводит к возрастанию коэффициента диффузии и способствует уплотнению керамики. В работе [16] показано, что ионы магния могут занимать как октаэдрические, так и додекаэдрические позиции в решетке граната в зависимости от смещения стехиометрии в сторону избытка иттрия или алюминия. В связи с этим смещение стехиометрии в сочетании с изменением положения внедренных ионов магния может оказывать влияние на микроструктуру и оптические свойства керамики.

Цель данной работы — исследование влияния концентрации MgO на микроструктуру и оптические свойства керамики в условиях смещения стехиометрии, как в сторону избытка ионов Al<sup>3+</sup>, так и в сторону избытка Y<sup>3+</sup>.

## Материалы и методика эксперимента

При синтезе керамики применены следующие реактивы: аммиак водный (25 %, ОСЧ, Сигма Тек, Россия); алюминия нитрат нонагидрат (99,99 %, Acros organics, Бельгия); иттрия нитрат гексагидрат (99,9 %, Chemical point, Германия); аммоний сернокислый (99 %, Ч, Интерхим, Россия); изопропиловый спирт (99,95 %, XЧ, Экос-1, Россия); гексаметилентетрамин (99,7 %, Марка С, сорт высший, Интерхим, Россия); магний хлористый, гексагидрат (99,9 %, ЧДА, Интерхим, Россия).

Для всех реакций и процессов обработки использована деионизованная вода.

Методом двухстадийного соосаждения уротропином с последующим измельчением и прокаливанием порошка прекурсора получены образцы керамических порошков ИАГ следующих составов:  $Al_Mg - 4,8$  мол.% избытка Al;  $S_Mg$  — стехиометричный ИАГ;  $Y_Mg - 2,9$  мол.% избытка Y. Методика получения керамического порошка подробно описана в работе [17]. На стадии измельчения порошков прекурсоров в каждый из полученных составов была введена спекающая добавка MgO в концентрациях 0, 0,05, 0,1, 0,2 масс.% в пересчете на керамический порошок. Компактирование керамических порошков выполнено методом одноосного прессования в стальной пресс-форме диаметром 13 мм без использования связующих добавок. Давление прессования имело фиксированное значение — 50 МПа.

Выбор величины давления одноосного прессования осуществлен с учетом результатов, представленных в работе [18]. Выполнен отжиг полученных компактов на воздухе при температуре 1300 °С в течение 2 ч в печи Nabertherm HT 40/17 (Германия), и спекание в вакуумной печи СШВЭ-1.2,5/25 с вольфрамовыми нагревателями при температуре 1780 °С в течение 20 ч. Далее образцы керамики подвергались двусторонней шлифовке и полировке. Микроструктура керамики исследована методом растровой электронной микроскопии с помощью сканирующего электронного микроскопа Tescan MIRA3-LMH с системой определения элементов AZtecEnergy Standart/X-max 20 (стандарт) (Tescan, Чехия). Средний размер зерна керамики определен по методике, описанной в работах [19, 20]. Химический состав керамики проанализирован методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDX), оптические свойства – методом спектрофотометрии с помощью спектрофотометра SF-56 (ОКБ «ЛОМО», Санкт-Петербург, Россия). Толщина исследуемых образцов составила  $2,5 \pm 0,1$  мм.

## Результаты и обсуждение

Микрофотографии полученных образцов ИАГкерамики показаны в табл. 1.

Образцы Al Mg, S Mg и Y Mg без добавления MgO имеют крупнокристаллическую структуру со средним размером зерна 38,3 ± 5,4; 32,6 ± 4,0 и 26,9 ± 3,9 мкм соответственно. В образцах с избытком алюминия обнаружена примесная фаза Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (рис. 1). В отсутствии MgO примесная фаза Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> локализована преимущественно внутри зерен керамики. Образцы S\_Mg и Y\_Mg не содержат примесной фазы Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Однако при отсутствии в их составе добавки MgO микроструктура керамики содержит поры в межзеренном и внутризеренном пространствах. Все образцы, полученные без добавления MgO, имели низкий коэффициент светопропускания и практически непрозрачны (рис. 2). При введении MgO в количестве 0,05 и 0,1 масс.% размер зерна для всех образцов значительно уменьшился, керамические образцы практически не имели пор.

При концентрации MgO 0,2 масс.% стехиометрические образцы и образцы с избытком иттрия содержат поры и непрозрачны. Заметим, что оптическое пропускание керамики с избытком алюминия при данной концентрации MgO оставалось высоким — более 70 % (рис. 2). При этом примесная фаза Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> отсутствует.

В табл. 2 показана зависимость среднего размера зерна полученных керамических образцов  $Al_Mg$ ,  $S_Mg$  и  $Y_Mg$  от концентрации MgO. При отклонении стехиометрии граната в сторону избытка алюминия введение MgO (образец  $Al_Mg$ ) в концентрациях 0,05, 0,1, 0,2 масс.% привело к значительному уменьшению среднего размера зерна.

Уменьшение среднего размера зерна наблюдалось и в стехиометрическом гранате при концентрациях MgO 0,05 и 0,1 масс.%. Однако при концентрации MgO 0,2 масс.% средний размер зерна возрос до 12,0±0,8 мкм.

В составе с избытком иттрия введение MgO в количестве 0,05 масс.% приводит к уменьшению среднего

Концентрация MgO,	Керамические образцы				
масс.%	Al_Mg	$S_Mg$	Y_Mg		
0	Аl₂O3 ↓ ↓	т Поры ⊨ <u>50 мкм</u>	Поры → / ↓ 50 мкм		
0,05	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	<u>_50 мкм</u> _	<u>⊨<sup>50</sup> мкм</u>		
0,1	<u>50 мкм</u>	, <u>50 мкм</u> ,	<u>50 мкм</u>		
0,2	<u>50 мкм</u>	Поры внутри зерен 50 мкм	<u>, 50 мкм</u>		

*Таблица 1.* Микрофотографии керамических образцов *Al\_Mg*, *S\_Mg* и *Y\_Mg* с различной концентрацией оксида магния *Table 1.* Micrographs of ceramic samples *Al\_Mg*, *S\_Mg* and *Y\_Mg* with different magnesium oxide concentrations

размера зерна с 26,9  $\pm$  3,9 до 13,7  $\pm$  1,4 мкм. При концентрации MgO 0,1 и 0,2 масс.% средний размер зерна составил 15,8  $\pm$  2,7 и 17,8  $\pm$  3,4 мкм соответственно.

Таким образом, величина отклонения от стехиометрии и концентрация спекающей добавки MgO оказывают существенное влияние на микроструктуру и оптические свойства керамики.

В случае избытка алюминия (4,8 мол.%) состав оказался более «гибким», и все образцы с добавкой MgO в рассматриваемом диапазоне концентраций (0,05–0,2 масс.%) имели высокий коэффициент оптического пропускания, сопоставимый со стехиометрическим составом с 0,05 масс.% MgO (более 70 %). Вероятно, происходит частичное встраивание магния в позицию иттрия, позволяющее скомпенсировать отклонение от стехиометрии в достаточно широких пределах [16].

В стехиометрическом гранате снижение прозрачности керамики наблюдается при концентрациях MgO не менее 0,1 масс.%. В составе с избытком иттрия введение MgO в концентрации 0,2 масс.% привело к ухудшению оптического пропускания образцов. Данный факт объясняется тем, что магний имеет ограниченную растворимость в решетке ИАГ, и в условиях избытка иттрия возможно образование перовскита YAIO<sub>3</sub>, что привело к уменьшению светопропускания керамики.

Рентгенофазовый анализ используемых в данном исследовании керамических порошков, проведенный авторами в работе [16], показал наличие примесной фазы YAlO<sub>3</sub> в образце с избытком иттрия и концентрацией оксида магния 0,2 масс.%.

Поры внутри зерен керамики в микроструктуре образцов *S\_Mg* и *Y\_Mg* при концентрации MgO



*Puc. 1.* Результаты энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии, полученные с помощью растрового электронного микроскопа с системой определения элементов: электронное изображение (*a*); суммарное распределение элементов в образце (*b*); распределение алюминия в образце (*c*). Образец *Al\_Mg*, концентрация оксида магния 0,05 масс.%. Темные пятна на микрофотографиях идентифицированы как примесная фаза Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

*Fig. 1.* The results of energy dispersive X-ray spectroscopy, obtained using a scanning electron microscope with a system for determining the elements: electronic image (*a*); total distribution of elements in the sample (*b*); distribution of aluminum in the sample (*c*). Sample *Al\_Mg*, magnesium oxide concentration 0.05 wt.%. Dark spots in micrographs were identified as Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> impurity phase

0,2 масс.% указывают на слишком интенсивный рост зерен. Следовательно, можно предположить, что данная концентрация является избыточной.

На основании полученных результатов можно сделать вывод, что оптимальная концентрация MgO для спекания прозрачной керамики на основе ИАГ состави-





	Отклонение от стехиометрии	Концентрация MgO, масс.%			
Наименование образца		0	0,05	0,1	0,2
		Средний размер зерна, мкм			
Al_Mg	Избыток катионов Al <sup>3+</sup> (4,8 мол.%)	38,3 ± 5,4	$7,9 \pm 0,4$	6,9 ± 0,4	6,4 ± 1,1
S_Mg	Стехиометрия	$32,6 \pm 4,0$	$6,7 \pm 0,6$	7,0 ± 0,3	$12,0 \pm 0,8$
Y_Mg	Избыток катионов Ү <sup>3+</sup> (2,9 мол.%)	26,9 ± 3,9	13,7 ± 1,4	15,8 ± 2,7	17,8 ± 3,4

Таблица 2. Средний размер зерна, мкм, при раз	личной концентрации оксида магния
Table 2. Average grain size at different con	centrations of magnesium oxide

ла 0,05–0,2 масс.% (для составов с избытком алюминия) и 0,05 масс.% (для стехиометрии).

В случае избытка иттрия (2,9 мол.%) керамика отличается сравнительно низким светопропусканием. Максимальное светопропускание около 50 % получено при концентрации оксида магния 0,05 масс.%.

## Заключение

В работе показано, что в исследованном диапазоне концентраций спекающей добавки оксида магния (0–0,2 масс.%) наиболее оптимальной является

#### Литература

- Liu Q., Liu J., Li J., Ivanov M., Medvedev A., Zeng Y., Jin G., Ba X., Liu W., Jiang B., Pan Y., Guo J. Solid-state reactive sintering of YAG transparent ceramics for optical applications // Journal of Alloys and Compounds. 2014. V. 616. P. 81–88. https://doi.org/10.1016/j. jallcom.2014.06.013
- Yagi H., Yanagitani T., Numazawa T., Ueda K. The physical properties of transparent Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Elastic modulus at high temperature and thermal conductivity at low temperature // Ceramics International. 2007. V. 33. N 5. P. 711–714. https://doi.org/10.1016/j. ceramint.2005.12.007
- Yang H., Zhang J., Luo D., Lin H., Shen D., Tang D. Novel transparent ceramics for solid-state lasers // High Power Laser Science And Engineering. 2013. V. 1. N 3–4. P. 138–147. https://doi. org/10.1017/hpl.2013.18
- Yanagida T., Takahashi H., Ito T., Kasama D., Enoto T., Sato M., Hirakuri S., Kokubun M., Makishima K., Yanagitani T., Yagi H., Shigeta T., Ito T. Evaluation of properties of YAG (Ce) ceramic scintillators // IEEE Transactions on Nuclear Science. 2005. V. 52. N 5. Part 3. P. 1836–1841. https://doi.org/10.1109/TNS.2005.856757
- Taira T. Ceramic YAG lasers // Comptes Rendus Physique. 2007. V. 8. N 2. P. 138–152. https://doi.org/10.1016/j.crhy.2006.08.002
- Ikesue A., Aung Y.L. Ceramic laser materials // Nature Photonics. 2008. V. 2. N 12. P. 721–727. https://doi.org/10.1038/ nphoton.2008.243
- Ikesue A., Aung Y.L., Taira T., Kamimura T., Yoshida K., Messing G.L. Progress in ceramic lasers // Annual Review of Materials Research. 2006. V. 36. P. 397–429. https://doi.org/10.1146/ annurev.matsci.36.011205.152926
- Mezeix L., Green D.J. Comparison of the mechanical properties of single crystal and polycrystalline yttrium aluminum garnet // International Journal of Applied Ceramic Technology. 2006. V. 3. N 2. P. 166–176. https://doi.org/10.1111/j.1744-7402.2006.02068.x
- Лукин Е.С. Современная высокоплотная оксидная керамика с регулируемой микроструктурой Ч. II. Обоснование принципов выбора модифицирующих добавок, влияющих на степень спекания оксидной керамики // Огнеупоры и техническая керамика. 1996. № 5. С. 2–9.
- Stevenson A.J., Li X., Martinez M.A., Anderson J.M., Suchy D.L., Kupp E.R., Dickey E.C., Mueller K.T., Messing G.L. Effect of SiO<sub>2</sub> on densification and microstructure development in Nd:YAG transparent ceramics // Journal of the American Ceramic Society.

0,05 масс.%. Установлено, что при введении спекающей добавки оксида магния в концентрации 0–0,2 масс.% в иттрий-алюминиевый гранат, значительное влияние на светопропускание керамики оказала стехиометрия состава. При отклонении стехиометрии в сторону избытка алюминия (4,8 мол.%) допустимо введение до 0,2 масс.% оксида магния без существенного уменьшения светопропускания. Введение оксида магния в концентрации более 0,1 масс.% привело к значительному уменьшению светопропускания керамики стехиометричного состава и состава с избытком иттрия (2,9 мол.%).

## References

- Liu Q., Liu J., Li J., Ivanov M., Medvedev A., Zeng Y., Jin G., Ba X., Liu W., Jiang B., Pan Y., Guo J. Solid-state reactive sintering of YAG transparent ceramics for optical applications. *Journal of Alloys and Compounds*, 2014, vol. 616, pp. 81–88. https://doi.org/10.1016/j. jallcom.2014.06.013
- Yagi H., Yanagitani T., Numazawa T., Ueda K. The physical properties of transparent Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Elastic modulus at high temperature and thermal conductivity at low temperature. *Ceramics International*, 2007, vol. 33, no. 5, pp. 711–714. https://doi. org/10.1016/j.ceramint.2005.12.007
- Yang H., Zhang J., Luo D., Lin H., Shen D., Tang D. Novel transparent ceramics for solid-state lasers. *High Power Laser Science And Engineering*, 2013, vol. 1, no. 3–4, pp. 138–147. https://doi. org/10.1017/hpl.2013.18
- Yanagida T., Takahashi H., Ito T., Kasama D., Enoto T., Sato M., Hirakuri S., Kokubun M., Makishima K., Yanagitani T., Yagi H., Shigeta T., Ito T. Evaluation of properties of YAG (Ce) ceramic scintillators. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2005, vol. 52, no. 5, part 3, pp. 1836–1841. https://doi.org/10.1109/ TNS.2005.856757
- Taira T. Ceramic YAG lasers. *Comptes Rendus Physique*, 2007, vol. 8, no. 2, pp. 138–152. https://doi.org/10.1016/j.crhy.2006.08.002
- Ikesue A., Aung Y.L. Ceramic laser materials. *Nature Photonics*, 2008, vol. 2, no. 12, pp. 721–727. https://doi.org/10.1038/ nphoton.2008.243
- Ikesue A., Aung Y.L., Taira T., Kamimura T., Yoshida K., Messing G.L. Progress in ceramic lasers. *Annual Review of Materials Research*, 2006, vol. 36, pp. 397–429. https://doi.org/10.1146/ annurev.matsci.36.011205.152926
- Mezeix L., Green D.J. Comparison of the mechanical properties of single crystal and polycrystalline yttrium aluminum garnet. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2006, vol. 3, no. 2, pp. 166–176. https://doi.org/10.1111/j.1744-7402.2006.02068.x
- Lukin E.S. Modern high-density oxide ceramics with a controlled microstructure. Part II. Substantiation of the principles for choosing modifying additives that affect the degree of sintering of oxide ceramics. *Refractories and Industrial Ceramics*, 1996, vol. 5-6, pp. 143–150. https://doi.org/10.1007/BF02307357
- Stevenson A.J., Li X., Martinez M.A., Anderson J.M., Suchy D.L., Kupp E.R., Dickey E.C., Mueller K.T., Messing G.L., Effect of SiO<sub>2</sub> on densification and microstructure development in Nd:YAG

2011. V. 94. N 5. P. 1380–1387. https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.04260.x

- Lu Z., Lu T., Wei N., Ma B., Zhang W., Li F., Guan Y. Novel phenomenon on valence unvariation of doping ion in Yb:YAG transparent ceramics using MgO additives // Journal of Wuhan University of Technology-Materials Science Edition. 2013. V. 28. N 2. P. 320–324. https://doi.org/10.1007/s11595-013-0686-5
- 12. Yang H., Qin X., Zhang J., Ma J., Tang D., Wang S., Zhang Q. The effect of MgO and SiO<sub>2</sub> codoping on the properties of Nd:YAG transparent ceramic // Optical Materials. 2012. V. 34. N 6. P. 940–943. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2011.05.029
- Zhou T., Zhang L., Yang H., Qiao X., Liu P., Tang D., Zhang J. Effects of sintering aids on the transparency and conversion efficiency of Cr<sup>4+</sup> Ions in Cr: YAG transparent ceramics // Journal of the American Ceramic Society. 2015. V. 98. N 8. P. 2459–2464. https://doi. org/10.1111/jace.13616
- Zhou T., Zhang L., Wei S., Wang L., Yang H., Fu Z., Chen H., Selim F.A., Zhang Q. MgO assisted densification of highly transparent YAG ceramics and their microstructural evolution // Journal of the European Ceramic Society. 2018. V. 38. N 2. P. 687–693. https://doi. org/10.1016/j.jeurceramsoc.2017.09.017
- Mohammadi F., Mirzaee O., Tajally M. Influence of TEOS and MgO addition on slurry rheological, optical, and microstructure properties of YAG transparent ceramic // Optical Materials. 2018. V. 85. P. 174– 182. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2018.08.047
- Kravtsov A.A., Nikova M.S., Vakalov D.S., Tarala V.A., Chikulina I.S., Malyavin F.F., Chapura O.M., Krandievsky S.O., Kuleshov D.S., Lapin V.A. Combined effect of MgO sintering additive and stoichiometry deviation on YAG crystal lattice defects // Ceramics International. 2019. V. 45. N 16. P. 20178–20188. https:// doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.06.287
- Kravtsov A.A., Chikulina I.S., Tarala V.A., Evtushenko E.A., Shama M.S., Tarala L.V., Malyavin F.F., Vakalov D.S., Lapin V.A., Kuleshov D.S. Novel synthesis of low-agglomerated YAG:Yb ceramic nanopowders by two-stage precipitation with the use of hexamine // Ceramics International. 2019. V. 45. N 1. P. 1273–1282. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.10.010
- Malyavin F.F., Tarala V.A., Kuznetsov S.V., Kravtsov A.A., Chikulina I.S., Shama M.S., Medyanik E.V., Ziryanov V.S., Evtushenko E.A., Vakalov D.S., Lapin V.A., Kuleshov D.S., Tarala L.V., Mitrofanenko L.M. Influence of the ceramic powder morphology and forming conditions on the optical transmittance of YAG:Yb ceramics // Ceramics International. 2019. V. 45. N 4. P. 4418–4423. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.11.119
- Dai J., Pan Y., Chen H., Xie T., Kou H., Li J. Fabrication of Tb<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> transparent ceramics using co-precipitated nanopowders: The influence of ammonium hydrogen carbonate to metal ions molar ratio // Ceramics International. 2017. V. 43. N 16. P. 14457–14463. https:// doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.07.225
- Mendelson M.I. Average grain size in polycrystalline ceramics // Journal of the American Ceramic Society. 1969. V. 52. N 8. P. 443– 446. https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1969.tb11975.x

#### Авторы

**Малявин Федор Федорович** — заведующий лабораторией, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, <u>555748614600</u>, https://orcid.org/0000-0002-5255-9346, fedormalyavin@mail.ru

Кравцов Александр Александрович — кандидат технических наук, старший научный сотрудник, Федеральный исследовательский центр Южный научный центр Российской академии наук, Ставрополь, 355009, Российская Федерация; научный сотрудник, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 557191056680, https://orcid.org/0000-0002-0645-1166, sanya-kravtsov@yandex.ru

Тарала Виталий Алексеевич — кандидат химических наук, заведующий научно-лабораторным комплексом, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 36873277700, https://orcid.org/0000-0001-6688-2681, vitaly-tarala@ yandex.ru

Никова Марина Сергеевна — инженер, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация,

transparent ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, vol. 94, no. 5, pp. 1380–1387. https://doi. org/10.1111/j.1551-2916.2010.04260.x

- Lu Z., Lu T., Wei N., Ma B., Zhang W., Li F., Guan Y. Novel phenomenon on valence unvariation of doping ion in Yb:YAG transparent ceramics using MgO additives. *Journal of Wuhan University of Technology-Materials Science Edition*, 2013, vol. 28, no. 2, pp. 320–324. https://doi.org/10.1007/s11595-013-0686-5
- Yang H., Qin X., Zhang J., Ma J., Tang D., Wang S., Zhang Q. The effect of MgO and SiO<sub>2</sub> codoping on the properties of Nd:YAG transparent ceramic. *Optical Materials*, 2012, vol. 34, no. 6, pp. 940– 943. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2011.05.029
- Zhou T., Zhang L., Yang H., Qiao X., Liu P., Tang D., Zhang J. Effects of sintering aids on the transparency and conversion efficiency of Cr<sup>4+</sup> Ions in Cr: YAG transparent ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2015, vol. 98, no. 8, pp. 2459–2464. https://doi. org/10.1111/jace.13616
- Zhou T., Zhang L., Wei S., Wang L., Yang H., Fu Z., Chen H., Selim F.A., Zhang Q. MgO assisted densification of highly transparent YAG ceramics and their microstructural evolution. *Journal of the European Ceramic Society*, 2018, vol. 38, no. 2, pp. 687–693. https:// doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2017.09.017
- Mohammadi F., Mirzaee O., Tajally M. Influence of TEOS and MgO addition on slurry rheological, optical, and microstructure properties of YAG transparent ceramic. *Optical Materials*, 2018, vol. 85, pp. 174–182. https://doi.org/10.1016/j.optmat.2018.08.047
- Kravtsov A.A., Nikova M.S., Vakalov D.S., Tarala V.A., Chikulina I.S., Malyavin F.F., Chapura O.M., Krandievsky S.O., Kuleshov D.S., Lapin V.A. Combined effect of MgO sintering additive and stoichiometry deviation on YAG crystal lattice defects. *Ceramics International*, 2019, vol. 45, no. 16, pp. 20178–20188. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.06.287
- Kravtsov A.A., Chikulina I.S., Tarala V.A., Evtushenko E.A., Shama M.S., Tarala L.V., Malyavin F.F., Vakalov D.S., Lapin V.A., Kuleshov D.S. Novel synthesis of low-agglomerated YAG:Yb ceramic nanopowders by two-stage precipitation with the use of hexamine. *Ceramics International*, 2019, vol. 45, no. 1, pp. 1273– 1282. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.10.010
- Malyavin F.F., Tarala V.A., Kuznetsov S.V., Kravtsov A.A., Chikulina I.S., Shama M.S., Medyanik E.V., Ziryanov V.S., Evtushenko E.A., Vakalov D.S., Lapin V.A., Kuleshov D.S., Tarala L.V., Mitrofanenko L.M. Influence of the ceramic powder morphology and forming conditions on the optical transmittance of YAG:Yb ceramics. *Ceramics International*, 2019, vol. 45, no. 4, pp. 4418–4423. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.11.119
- Dai J., Pan Y., Chen H., Xie T., Kou H., Li J. Fabrication of Tb<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> transparent ceramics using co-precipitated nanopowders: The influence of ammonium hydrogen carbonate to metal ions molar ratio. *Ceramics International*, 2017, vol. 43, no. 16, pp. 14457–14463. https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.07.225
- Mendelson M.I. Average grain size in polycrystalline ceramics. Journal of the American Ceramic Society, 1969, vol. 52, no. 8, pp. 443–446. https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1969.tb11975.x

#### Authors

**Fedor F. Malyavin** — Head of Laboratory, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, <u>55748614600</u>, https://orcid.org/0000-0002-5255-9346, fedormalyavin@mail.ru

Alexander A. Kravtsov — PhD, Senior Researcher, Federal Research Center the Southern Scientific Centre of the Russian Academy of Sciences, Rostov-on-Don, 344006, Russian Federation; Scientific Researcher, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, S 57191056680, https://orcid.org/0000-0002-0645-1166, sanya-kravtsov@ yandex.ru

Vitaly A. Tarala — PhD, Head of Laboratory Complex, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, 36873277700, https://orcid.org/0000-0001-6688-2681, vitaly-tarala@yandex.ru

Marina S. Nikova — Engineer, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, s 57191601053, https://orcid. org/0000-0001-8810-4493, m-s-shama@yandex.ru

57191601053, https://orcid.org/0000-0001-8810-4493, m-s-shama@ yandex.ru

Чикулина Ирина Сергеевна — заведующий лабораторией, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 57204186833, https://orcid.org/0000-0002-0871-8776, iraaaa@yandex.ru

Вакалов Дмитрий Сергеевич — кандидат физико-математических наук, заведующий лабораторией, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 57204185431, https://orcid.org/0000-0001-6788-3811, megadims@ gmail.com

**Лапин Вячеслав Анатольевич** — кандидат технических наук, старший научный сотрудник, Федеральный исследовательский центр Южный научный центр Российской академии наук, Ставрополь, 355009, Российская Федерация; научный сотрудник, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 55748317300, https://orcid.org/0000-0002-1938-4134, viacheslavlapin@yandex.ru

Кулешов Дмитрий Сергеевич — инженер, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 55748259500, https://orcid.org/0000-0003-4314-1578, kule-dmitry@ yandex.ru

Медяник Евгений Викторович — ведущий инженер, Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009, Российская Федерация, 55204793700, https://orcid.org/0000-0002-5947-7810, miedianik84@mail.ru

Статья поступила в редакцию 14.09.2021 Одобрена после рецензирования 05.10.2021 Принята к печати 30.11.2021 Irina S. Chikulina — Head of Laboratory, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, <u>557204186833</u>, https://orcid.org/0000-0002-0871-8776, iraaaa@yandex.ru

Dmitry S. Vakalov — PhD, Head of Laboratory, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, 557204185431, https://orcid.org/0000-0001-6788-3811, megadims@gmail.com

Viacheslav A. Lapin — PhD, Senior Researcher, Federal Research Center the Southern Scientific Centre of the Russian Academy of Sciences, Rostov-on-Don, 344006, Russian Federation; Scientific Researcher, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, S 55748317300, https://orcid.org/0000-0002-1938-4134, viacheslavlapin@ yandex.ru

**Dmitry S. Kuleshov** — Engineer, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, **5**5748259500, https://orcid. org/0000-0003-4314-1578, kule-dmitry@yandex.ru

**Evgenii V. Medyanik** — Lead Engineer, North-Caucasus Federal University, Stavropol, 355009, Russian Federation, <u>557204793700</u>, https://orcid.org/0000-0002-5947-7810, miedianik84@mail.ru

Received 14.09.2021 Approved after reviewing 05.10.2021 Accepted 30.11.2021



Работа доступна по лицензии Creative Commons «Attribution-NonCommercial»