

분쇄-침전을 이용한 다결정 YAG 세라믹스의 합성

홍석범 · 정현기 · 심수만[†]

홍익대학교 재료공학부

(2003년 10월 17일 접수; 2003년 11월 18일 승인)

Synthesis of Polycrystalline YAG Ceramics by Milling-precipitation

Suk-Bum Hong, Hyun-Gi Jung, and Soo-Man Sim[†]

School of Materials Science and Engineering, Hongik University, Jochiwon, Chungnam 330-701, Korea

(Received October 17, 2003; Accepted November 18, 2003)

초 록

알루미나 분말을 분쇄하면서 Y 수화물을 동시에 침전시켜 YAG 분말을 합성하였다. 하소 분말(1200°C, 4 h)에는 YAG 외에 소량의 YAM이 남아 있었다. 그러나 평균 입경 0.57 µm으로 분쇄한 분말 성형체에서는 산화물 혼합법에서 YAG 단일상이 얻어지는 온도(1500~1600°C) 보다 훨씬 낮은 1300°C에서 YAG 단일상이 이미 형성되었다. 분말의 소결성은 우수하여 소결조제 SiO₂(350 ppm Si)의 첨가에 관계없이 치밀화가 잘 일어났다. SiO₂를 첨가하지 않은 경우, 1600°C에서 98%의 소결밀도를 얻었다. SiO₂를 첨가한 경우에는 1500°C에서 치밀화가 더 잘 일어나 97.7%의 소결밀도가 얻어졌으며, 1600°C에서는 SiO₂의 소결촉진 효과가 나타나지 않아 밀도는 SiO₂를 첨가하지 않은 시편과 비슷하였다.

ABSTRACT

Yttrium Aluminum Garnet (YAG) powders were prepared by precipitation of Y hydroxides during milling of alumina powders. The powder calcined at 1200°C for 4 h contained a small amount of Yttrium Aluminum Monoclinic (YAM) in addition to YAG. However, phase-pure YAG was obtained in the compact of the milled powder with an average particle size of 0.57 µm at 1300°C, which is much lower than those (1500~1600°C) for a mixed oxide method. The powder was found to exhibit an excellent sinterability regardless of the addition of a sintering aid, SiO₂(350 ppm Si). The undoped sample was sintered to a relative density of 98% at 1600°C. In contrast, the addition of SiO₂ caused a considerable densification to occur at 1500°C and the relative density reached 97.7%. But the sintering aid had little effect on the densification at 1600°C, showing a similar relative density to the undoped sample.

Key words : YAG, Polycrystalline, Milling, Precipitation, Sinterability

1. 서 론

Yttrium Aluminum Garnet (YAG, Y₃Al₅O₁₂)는 입방정의 garnet 결정구조를 지니는 화합물로서 독특한 광학적, 기계적 성질로 많은 응용분야에서 관심을 받는 재료이다. YAG 단결정은 고체 레이저 발진재료로서 널리 사용되고 있으며, 희토류 원소로 도핑한 YAG 분말은 고에너지의 전자빔에 열안정성과 휘도가 우수하기 때문에 디스플레이 이용 형광체로 각광을 받고 있다.¹⁻³⁾ 또한, YAG는 산화물 중에서 크립 저항이 가장 크기 때문에 다결정 YAG를 다양한 복합재료의 형태로 제조하여 이를 고온의 산화 분위기에서 사용가능한 구조재료로 활용하는 연구가 이루어지고 있다.^{4,5)} 한편, 다결정 투명 YAG를 제조하여 단결

정 YAG를 대체하려는 연구도 진행되고 있다.

산화물 혼합법으로 다결정 YAG 세라믹스를 제조하려면 고온에서 장시간 가열하거나 SiO₂와 같은 소결조제가 요구된다. Al₂O₃과 Y₂O₃ 분말을 혼합하여 단일상의 YAG를 얻으려면 Al₂O₃과 Y₂O₃ 간의 고상반응이 매우 느리고 치밀화가 아주 어렵기 때문에 적어도 1600°C 보다 높은 온도가 요구된다. 만일 온도가 충분히 높지 못하면 YAG 외에 중간화합물인 Yttrium Aluminum Perovskite (YAP, YAIO₃), Yttrium Aluminum Monoclinic (YAM, Y₄Al₂O₉)과 Al₂O₃가 함께 나타난다.^{1,6)} 따라서 보다 낮은 소결온도와 짧은 소결시간으로 고밀도와 투명성을 얻으려면 미세하고 응집이 없는 단일상의 YAG 분말이 필수적이다. 이러한 분말을 얻기 위해 많은 연구자들이 수화물 침전법,^{1,7-9)} 졸-겔법,¹⁰⁻¹⁴⁾ urea법,¹⁵⁾ 열분해법,¹⁶⁾ 연소합성법¹⁷⁾ 등과 같은 화학적 합성법으로 반응성이 큰 YAG 미분말의 합성을 시도하였다. 그러나 대부분의 합성법에서는 YAG 단일상이 생성되지 않고 중간화합물이 나타나거나

[†]Corresponding author : Soo-Man Sim

E-mail : smsim@hongik.ac.kr

Tel : +82-41-860-2518 Fax : +82-41-863-6561

일부는 안정한 상으로 분말에 존재하기 때문에 이차상을 모두 YAG로 변화시키기 위해서는 여전히 1000°C 이상의 온도와 장시간 가열이 요구되고 있다. 이 경우, 반응성이 큰 입자들 사이에 응집이 일어나 분말의 소결성이 저하될 수 있다.

다결정 투명 YAG에 대한 본격적인 연구는 1990년대에 이르러 활발히 진행되었다. Ikesue 등^{6,18)}은 미립의 고순도 Al₂O₃, Y₂O₃, Nd₂O₃ 분말을 합성하고 이 분말에 320 ppm의 Si를 도핑한 후, 1750°C에서 20시간 진공소결하여 단결정과 거의 동일한 광학적 성질을 지닌 다결정 투명 Nd:YAG를 제조하였다. 최근에는 Li 등⁹⁾이 ammonium hydrogen carbonate를 침전제로 사용하여 질산염 공침법으로 합성한 분말로부터 1700°C에서 소결조제를 첨가하지 않고 투명한 YAG를 제조하였다고 주장하였다. 또한, Tachiwaki 등¹³⁾은 금속 염화물과 hydrazine으로 분말을 합성하고 1600°C에서 투명성을 얻었다고 보고하였다. 그러나 이들 모두 YAG의 광특성에 대한 결과를 발표한 적은 없다.

YAG 세라믹스를 보다 쉽게 제조하기 위한 방법으로 소결성이 매우 우수한 분말의 슬러리를 분쇄하면서 미세한 수화물을 동시에 침전시키는 MP법(Milling-Precipitation)이 있다. MP법은 금속염 수용액에 분산시킨 산화물을 ball mill하면서 침전제를 첨가하여 침전반응, 침전물과 산화물의 혼합 및 분쇄를 함께 진행함으로써 다성분 분말을 합성하는 제법으로서, 용액법으로 다성분 분말을 합성할 때 출발원료로서 수용성 금속염을 사용할 수 없는 경우에 적합하다. 이 방법은 원래 부분 옥살산법(partial oxalate method)¹⁹⁾으로 알려져 있지만 산화물이 잘 분산된 슬러리와 분쇄를 사용하는 점에서 다르다. MP법으로 PZT 분말이 합성된 적은 있으나 YAG 세라믹을 제조하는데 이용된 연구결과는 아직까지 발표된 바가 없다.

본 연구에서는 소결성이 우수한 고순도 Al₂O₃ 미분말에 Y 수화물이 잘 혼합된 YAG 조성의 슬러리를 attrition mill을 사용하여 MP법으로 제조하고, 하소 분말의 상압소결 과정에서 YAG 상 형성 및 치밀화 거동과 소결조제(SiO₂)의 영향을 조사하였다.

2. 실험방법

Fig. 1은 MP법에 의한 YAG 분말 합성과 소결체를 제조하는 공정을 나타낸다. 먼저 입경 0.36 μm인 Al₂O₃ 분말(99.99%, AKP-50, Sumitomo Chem. Co.)을 초순수에 분산시키고 분산제(NHP, sodium hexametaphosphate)를 첨가한 후 초음파 분쇄(Ultrasonic homogenizer 600 W, Cole Parmer)를 하여 Al₂O₃가 잘 분산되어 있는 슬러리를 만들었다. 슬러리의 pH를 0.1 M 암모니아수로 Y 수화물이 침전되는 조건인 10.5로 조절한 후 ZrO₂ ball(φ3 mm)이 담

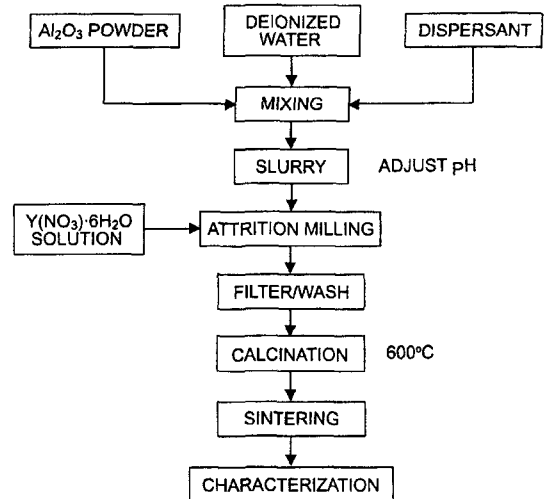


Fig. 1. Flow chart for fabrication of polycrystalline YAG by MP process.

긴 attrition jar에 주입하고 저속으로 교반하였다. 교반중인 슬러리에 미리 칭량한 2.0 M Y 질산염(Y(NO₃)₃·6H₂O, 99.9%, Aldrich Chem. Co.) 수용액을 YAG 조성에 맞게 첨가하고, 서서히 rpm을 증가하여 600 rpm에서 milling을 하였다. Milling 과정에서 pH를 측정하면서 과잉의 암모니아수를 주입하여 Y 수화물이 모두 침전되도록 하였으며, 수화물이 Al₂O₃와 균일하게 혼합되도록 하였다. 슬러리를 filter press(Millipore, USA)로 여과하고 에탄올로 세척을 반복한 후 85°C에서 12시간 건조하였다.

건조한 분말을 600°C에서 4시간 하소하여 Y 수화물 침전물이 모두 Y₂O₃가 되도록 한 후 600 rpm에서 1시간 attrition milling하였다. 소결조제로서 SiO₂ sol(입경 80 nm, 석경AT silica sol)을 희석한 후 350 ppm Si이 되도록 칭량하여 분말에 첨가하고 유발에서 혼합하고 건조하여 소결에 사용하였다. 소결시편은 분말에 결합제(0.5 wt% polyvinyl butyral)를 첨가하고 50 MPa의 압력으로 일축 가압하여 직경 1 cm의 pellet 형태로 성형한 다음, 200 MPa의 압력으로 냉간정수압 성형(cold isostatic press)을 하였다. 소결은 시편을 600°C에서 4시간 가열하여 결합제를 제거하고 1300~1600°C의 온도에서 6시간동안 상압에서 행하였다.

분말의 열분해 거동은 TG/DTA(TG-DTA 2000, MAC Science)를 이용하여 5°C/min의 승온속도로 공기 중에서 1200°C까지 열분석하여 조사하였다. 하소 과정에서의 YAG 상 형성은 분말을 1200°C까지 4시간 하소하여 XRD(CuKα, M03XHF, MAC Science)로 조사하고, 소결시편에 대해서도 XRD로 상 분석을 행하였다.

분말의 입도는 laser diffraction particle size analyzer(SALD-2001, Shimadzu)로 측정하였으며, 소결시편의 밀도(bulk density)는 Archimedes 법으로 측정하고 상대밀도는

YAG의 이론밀도(4.55 g/cm³)로부터 계산하였다. 분말의 형상과 소결시편의 미세구조는 SEM(JSM-5410, JEOL)으로 관찰하였으며, 소결시편은 3 μm과 1 μm diamond paste로 연마하고 열에칭하였다. Y 질산염 수용액의 농도는 ICP (Inductively Coupled Plasma)로 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 분말을 열분석한 결과로서, 분말에는 침전물인 Y(OH)₃가 Al₂O₃와 혼합되어 있으므로, ~600°C에서 거의 끝나는 23.8 wt%의 중량감소와 264°C와 471°C의 두 흡열 peak는 이 침전물의 열분해에 기인한다. 분말을 600°C에서 4시간 하소하고 상분석한 결과, Fig. 3에서와 같이 분말에는 Y(OH)₃가 분해하여 생성된 Y₂O₃ 결정상에 기인한 강한 회절 peak들과 α-Al₂O₃ 결정상에 기인하는 약한 회절 peak들이 나타났다.

YAG 상 형성 거동은 1200°C까지 4시간 동안 하소한

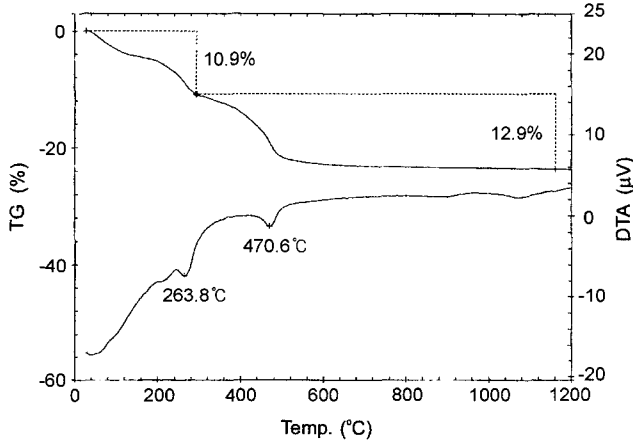


Fig. 2. TG/DTA curves of as-prepared powder at a heating rate of 5°C/min in air.

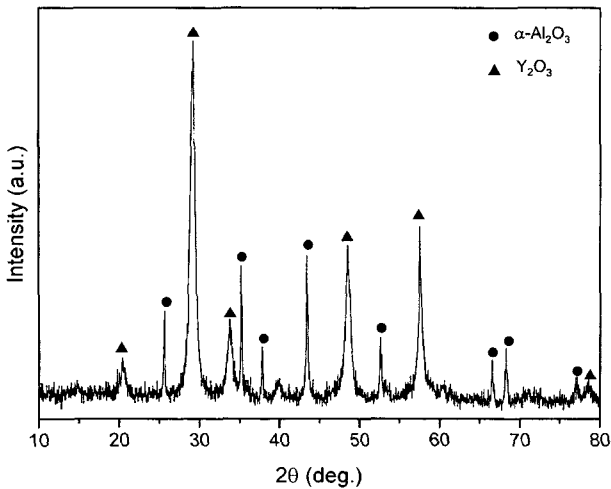


Fig. 3. XRD pattern of the powder calcined at 600°C for 4 h.

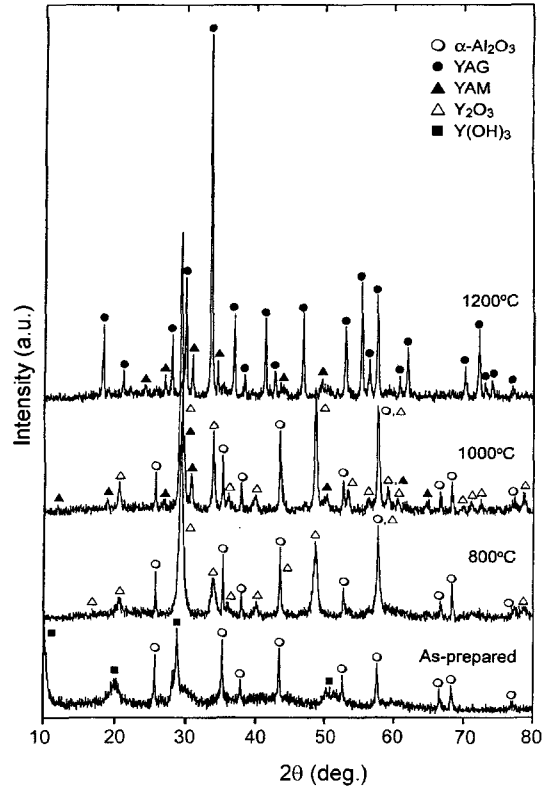
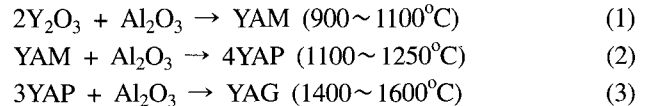


Fig. 4. XRD patterns of the powder heated at various temperatures for 4 h.

분말의 XRD pattern으로 확인하였다. Fig. 4에서와 같이, 하소하기 전의 분말에는 Y(OH)₃에 해당하는 회절 peak가 α-Al₂O₃ peak와 함께 나타나 있다. 하소온도 800°C에서는 고상반응이 일어나지 않아 Y₂O₃와 Al₂O₃가 여전히 존재 하였으나, 1000°C에서 Y₂O₃가 Al₂O₃와 반응하여 YAM이 형성되기 시작하였다. 이 YAM과 Al₂O₃, Y₂O₃와 Al₂O₃가 계속 반응함에 따라서 1200°C에서 Y₂O₃는 완전히 사라지고 결정상이 잘 발달된 YAG가 존재하였으며, 소량의 YAM이 남아 있었다.

YAG 상 형성에는 항상 중간화합물의 생성이 수반되며, 다음과 같은 일련의 반응에 의해 YAG가 형성된다.¹⁾



위 반응식에서 온도 범위는 반응이 시작되는 온도 구간을 나타낸다. 먼저 YAG의 화학양론적 조성에 관계없이 Y이 풍부한 YAM 상이 900°C에서 나타나 Al₂O₃와 공존하다가 Al₂O₃와 계속 반응하여 YAM 대신 YAP이 1100°C에서 형성된다. 최종적으로 YAP은 남아있는 Al₂O₃과 반응하여 YAG로 모두 변하는 것으로 알려져 있다. 각 상이 생성되는 온도는 분말의 입자가 작고 혼합도가 좋을수록 낮아진다.¹⁸⁾ 그러므로 비교적 입자가 큰 Al₂O₃와

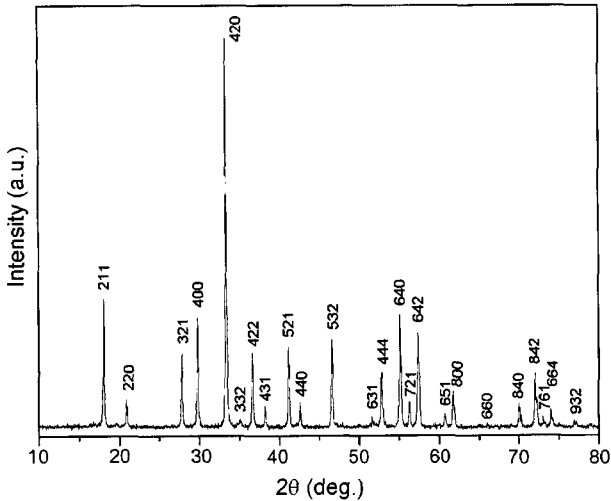


Fig. 5. XRD pattern of the sample sintered at 1300°C for 6 h.

Y₂O₃ 산화물을 혼합하여 고밀도의 다결정 YAG를 얻으려면 YAG 단일상이 얻지는 온도인 1600°C 이상에서 소결해야만 한다.

Ikesue 등¹⁸⁾은 일차 입자의 크기가 각각 ~0.06, ~0.40 μm 인 Y₂O₃와 Al₂O₃ 분말을 혼합하여 소결한 결과, 1300°C에서는 YAG가 전혀 생성되지 않고 1500°C에서 YAG가 YAP과 함께 나타났으며, 1700°C에서 단일상 YAG가 얻어졌다고 보고하였다. 본 연구에서 제조한 분말에는 미세한 Y₂O₃ 입자가 평균 입경이 0.36 μm인 Al₂O₃ 입자와 혼합되어 있으므로 분말의 반응성은 우수하여 산화물 혼합법에서보다 ~300°C 낮은 1300°C에서 YAG 단일상이 형성되었다. Fig. 5는 1300°C에서 6시간 소결한 시편의 XRD pattern으로서, 1300°C에서 이미 YAG 단일상이 형성되었음을 알 수 있었다. 회절 peak 강도로 보아 YAG 결정상이 매우 잘 발달된 것을 알 수 있으며, 산화물 혼합법에서 나타나는 YAP은 전혀 관찰되지 않았다. 이 온도에서 YAP이 나타나지 않는 것은 1200°C에서 고상반응이 빠르게 진행되어 YAG가 대부분 형성되고, 남아 있는 YAM에서 YAP이 생성되면서 바로 YAG로 상변이한 것으로 볼 수 있다. 한편, SiO₂가 도핑된 분말은 도핑되지 않은 시편과 동일한 회절 pattern(Fig. 5)을 나타내었다.

하소 분말은 Fig. 6의 입도 분포에서 보듯이 비교적 낮은 온도(600°C)에서 하소하였으므로 입자간 응집이 최대한 억제되어 분쇄가 비교적 용이한 것으로 나타났다. 하소 분말은 유발에서 분쇄하였기 때문에 평균 입경이 9.46 μm이며 70~0.3 μm의 넓은 입도 분포를 지니고 있었다. 이 분말을 1시간 동안 분쇄한 결과, 분말은 평균 입경이 0.57 μm으로 입도분포(5~0.2 μm)는 분쇄 전 보다 더 좁아졌으나, ~1 μm 보다 큰 입자들이 분말에 20% 정도 여전히 남아 있었다. Fig. 7은 하소한 분말을 1시간 attrition milling한 후의 SEM 사진이다. 사진의 분말은 분말 슬러

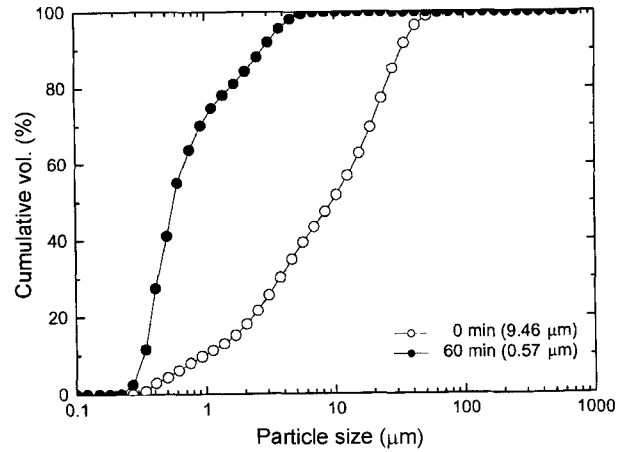


Fig. 6. Particle size distributions of the powders calcined and attrition-milled.

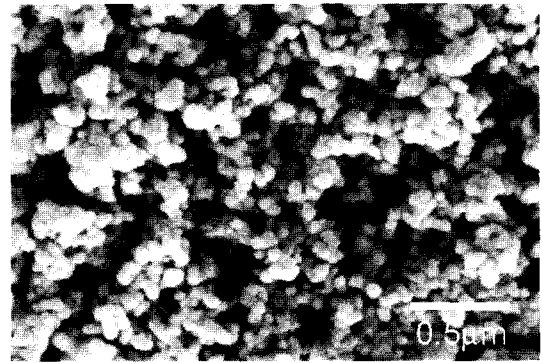


Fig. 7. SEM micrograph showing particle morphology of attrition-milled powder.

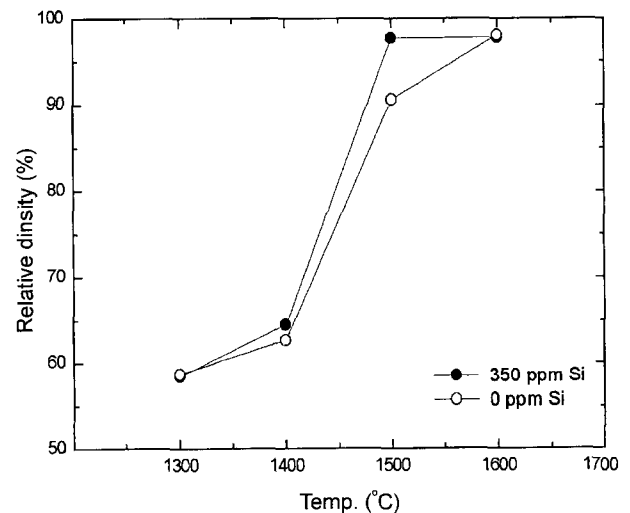


Fig. 8. Relative densities of the samples sintered at various temperatures for 6 h.

리를 침강시켜 얻은 것으로 비교적 작은 입자들만 보여주고 있다. 분말에는 구상의 형태를 하고 있는 직경 ~0.1 μm 정도의 일차 입자들이 서로 응집되어 있으며, 분말은 먼

저 수화물 침전과정에서 슬러리 상태로 분쇄되었고 하소 과정에서 다시 분쇄된 것으로 미세한 입자들로 구성되어 있고 큰 응집입자들로 함께 존재하였다.

Fig. 8은 1300°C에서 1600°C까지 각각 6시간 동안 상압 소결한 시편의 상대밀도로서, SiO₂(350 ppm Si)를 첨가한 시편의 밀도도 함께 나타나 있다. 치밀화는 두 시편 모두 1400°C 보다 높은 온도에서 잘 일어나고 있음을 보여준다. SiO₂를 도핑하지 않은 시편의 소결밀도는 1300°C에서 58.7%, 1400°C에서는 62.7%로 나타났고, 1500°C와 1600°C에서 밀도가 크게 증가하여 각각 90.5%, 98%가 되었다. SiO₂로 도핑한 시편의 경우, 밀도는 1300°C와 1400°C에서 각각 58.4%, 64.5%로 SiO₂를 도핑하지 않은 시편과 비슷하였다. 그러나 1500°C에서는 도핑하지 않은 시편과는 달리 SiO₂가 도핑된 시편의 밀도는 97.7%로 크게 향상되었지만, 1600°C에서는 97.8%가 되어 도핑하지 않은 시편과 밀도가 비슷하였다.

소결조제로서 SiO₂는 다결정 YAG 세라믹스의 치밀화를 향상시켜 이론밀도에 가까운 소결밀도를 얻을 수 있으며, 입성장도 촉진시킨다고 알려져 있다.^{6,18)} 또한, 비정상 입성장을 억제할 뿐만 아니라 입계에 이차상이 석출되는 것을 막아 미세구조를 향상시킨다고 보고되고 있다. 특히, 다결정 YAG는 치밀화가 어렵고 모든 중간상들이 YAG 상으로 변환 후에 일어나기 때문에 고밀도를 얻으려면 산화물 혼합법으로는 1600°C 이상의 온도에서 소결해야 한다. Ikesue 등¹⁸⁾은 Al₂O₃, Y₂O₃, Nd₂O₃ 미분말에 320 ppm의 Si를 도핑하고 1600°C에서 5시간 진공소결하여 98.2%의 소결밀도를 얻었으며, 1750°C에서 20시간 진공소결하여 고밀도의 다결정 투명 YAG를 얻을 수 있었다. 그러나 이들은 1600°C 보다 낮은 온도에서 소결하고 SiO₂의 첨가 효과를 발표한 적이 없다.

본 연구에서는 SiO₂의 첨가는 1400~1500°C 사이의 온도에서 치밀화를 촉진시켰으나, 1600°C에서는 SiO₂의 첨가 효과가 나타나지 않았다. 이러한 결과는 구연산젤법으로 만든 분말에 131 ppm의 Si이 첨가된 경우에서도 관찰되어 1400°C에서의 소결밀도 68.1%가 1500°C에서 88.6%로 향상되었다.²⁰⁾

MP법으로 만든 분말은 SiO₂의 첨가에 관계없이 소결성이 우수한 것으로 나타났다. SiO₂가 도핑되지 않은 시편의 경우, 1600°C에서는 구연산젤법으로 만든 분말의 밀도(95.2%) 보다 더 높았다.²⁰⁾ Sim⁸⁾은 질산염 공침법으로 만든 분말로부터 1600°C에서 89%의 밀도가 얻어졌다고 하였으며, Li 등⁹⁾도 질산염으로부터 만든 분말 성형체를 1500°C에서 소결하고, 공기 분위기에서 63%, 진공에서 81.2%의 밀도를 얻었다고 발표하였다. 또한 Manalert와 Rahaman¹⁴⁾은 졸-겔법으로 만든 분말로부터 1650°C에서 95%의 밀도를 얻었다고 보고하였다.

SiO₂가 다결정 YAG의 치밀화를 향상시킬 뿐만 아니라

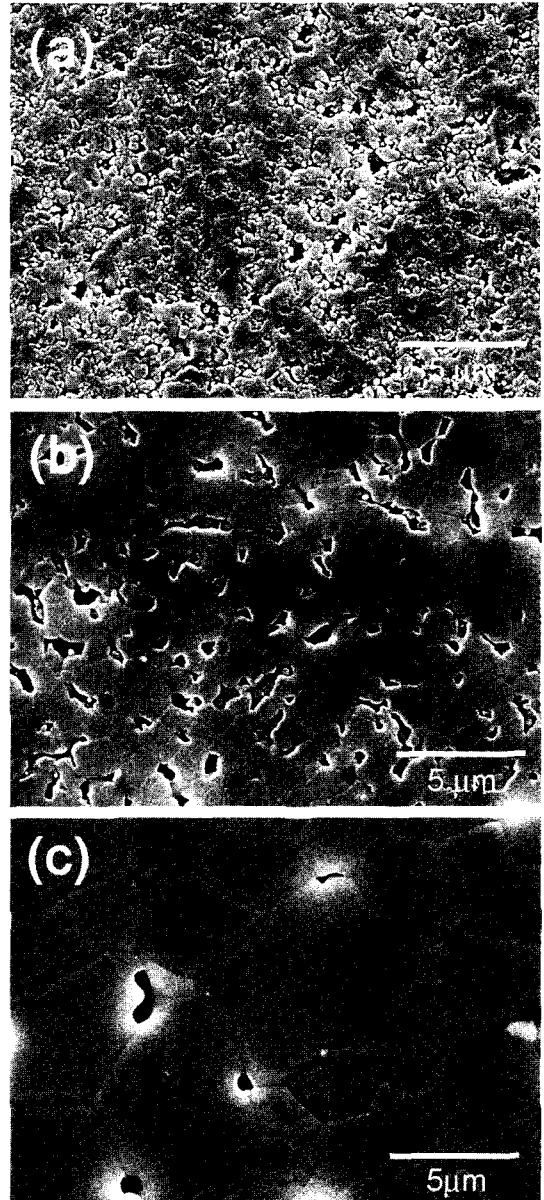


Fig. 9. SEM micrographs of the undoped samples; sintered at (a) 1400°C, (b) 1500°C, and (c) 1600°C.

입성장을 촉진시켜주는 효과는 소결시편의 미세구조에서 잘 나타나 있다. Figs. 9와 10은 1400~1600°C에서 소결한 시편을 연마한 표면의 SEM 사진으로, Fig. 9는 SiO₂가 도핑되지 않은 시편이며 Fig. 10은 SiO₂가 도핑된 시편에 대한 것이다. SiO₂가 도핑되지 않은 시편에서는 Fig. 9(a)에서와 같이 소결온도 1400°C에서 necking으로 생긴 작은 입자들과 함께 작은 입자들이 합체(coalescence)하여 큰 입자들이 형성되기 시작한 것으로 보아 소결은 여전히 초기단계임을 나타내고 있다. 그러나, 1500°C에서는 치밀화가 진행되면서 Fig. 9(b)에서처럼 결정립이 뚜렷이 드러났고, 1400°C에서보다 더 큰 기공들이 불규칙한 형태로

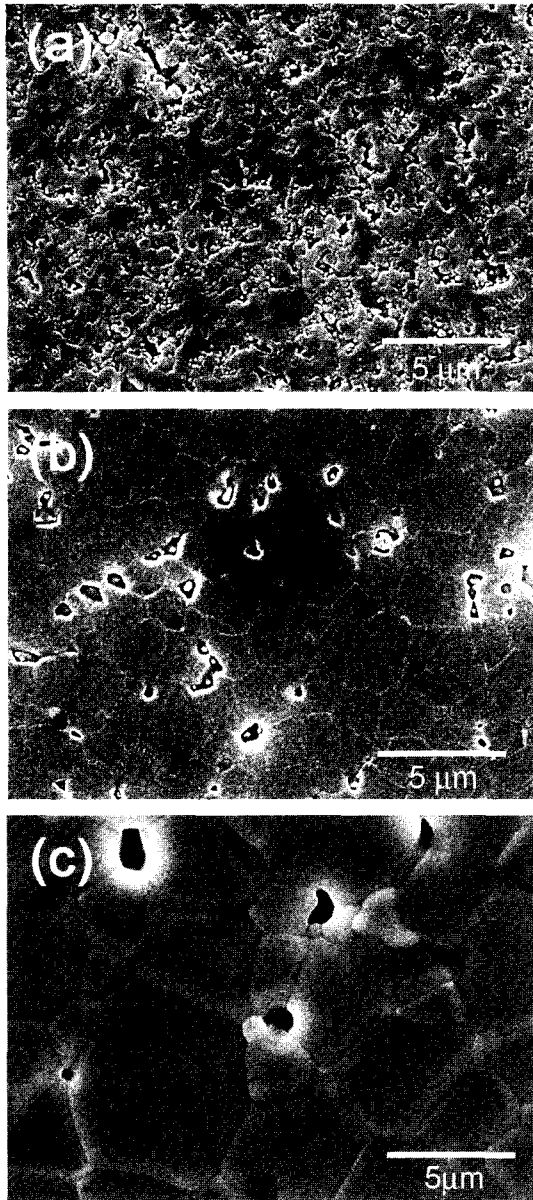


Fig. 10. SEM micrographs of the samples doped with SiO₂; sintered at (a) 1400°C, (b) 1500°C, and (c) 1600°C.

결정립 사이에 존재하였다. 소결온도가 증가함에 따라 입성장은 계속 진행하여 Fig. 9(c)의 1600°C에서는 3~10 μm 크기의 잘 발달된 결정립이 관찰되었으며, 기공들도 조대화(coarsening)에 의해 더 커져 폐기공으로서 결정립의 접합부에 존재하였다.

SiO₂가 도핑된 시편은 Fig. 10(a)에서와 같이 1400°C에서 도핑되지 않은 시편과 동일한 미세구조를 지니고 있었다. 반면에, 1500°C에서는 도핑되지 않은 시편과는 달리 Fig. 10(b)에서와 같이 치밀화가 거의 완료되면서 입성장도 함께 일어나 도핑되지 않은 시편 보다 더 큰 2~5 μm 크기의 결정립이 관찰되었으며 기공도 훨씬 감소하였다. 그

러나 Fig. 10(c)의 1600°C에서는 도핑되지 않은 시편과 같은 미세구조를 지니고 있어, SiO₂가 이 온도에서 치밀화와 입성장을 촉진시키는 효과는 관찰되지 않았다.

4. 결 론

소결성이 우수한 Al₂O₃ 미분말 슬러리를 attrition milling 하면서 Y 수화물을 동시에 침전시켜서 YAG 조성의 분말을 합성하였다. 분말을 600°C에서 하소한 결과, 분말에는 Y 수화물에서 분해된 Y₂O₃와 α-Al₂O₃가 혼합되어 있었으며, 1200°C에서는 YAG가 대부분 존재하였고 소량의 YAM이 남아 있었다. 그러나 평균 입경 0.57 μm로 분쇄한 분말로 소결한 시편에는 산화물 혼합법에서 YAG 단일상이 얻어지는 온도(1500~1600°C) 보다 훨씬 낮은 1300°C에서 결정상이 매우 잘 발달된 단일상 YAG가 이미 형성되었다.

분말의 소결성은 우수하여, SiO₂(350 ppm Si)를 첨가하지 않아도 치밀화가 1400°C 보다 높은 온도에서 잘 일어나 1500°C와 1600°C에서 각각 90.5%, 98%의 소결밀도를 얻을 수 있었다. SiO₂의 첨가는 1500°C에서 YAG의 치밀화와 입성장을 촉진시켜 97.7%의 소결밀도가 얻어졌고, 도핑되지 않은 시편 보다 더 큰 결정립(3~10 μm)이 관찰되었다. 그러나, 1600°C에서는 SiO₂의 첨가 효과가 나타나지 않아 소결밀도와 결정립의 크기는 도핑하지 않은 시편과 비슷하였다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구(R05-2001-000-00826-0)지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. K. M. Kinsman, J. McKittrick, E. Sluzky, and K. Hess, "Phase Development and Luminescence in Chromium-Doped Yttrium Aluminum Garnet (YAG:Cr) Phosphors," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77** [11] 2866-72 (1994).
2. Y. C. Kang, I. W. Lenggoro, S. B. Park, and K. Okuyama, "Photoluminescence Characteristics of YAG:Tb Phosphor Particles with Spherical Morphology and Non-aggregation," *J. Phy. Chem. Solids*, **60** 1855-58 (1999).
3. I. Matsubara, M. Parathaman, S. W. Allison, M. R. Cates, D. L. Beshears, and D. E. Holcomb, "Preparation of Cr-Doped Y₃Al₅O₁₂ Phosphors by Heterogeneous Precipitation Methods and their Luminescent Properties," *Mat. Res. Bull.*, **35** 217-24 (2000).
4. G. S. Corman, "High-temperature Creep of Some Single Crystal Oxides," *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, **12** [9-10] 1745-66 (1991).
5. T. A. Parthasarathy, T. Mah, and K. Keller, "High-tem-

- perature Deformation Behavior of Polycrystalline Yttrium Aluminum Garnet (YAG)," *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, **12** [9-10] 1767-73 (1991).
6. A. Ikesue, I. Furusato, and K. Kamata, "Fabrication of Polycrystalline Transparent YAG Ceramics by a Solid-state Reaction Method," *J. Am. Ceram. Soc.*, **78** [1] 225-28 (1995).
 7. P. Apte, H. Burke, and H. Pickup, "Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet by Reverse Strike Precipitation," *J. Mater. Res.*, **7** [3] 706-11 (1992).
 8. S.-M. Sim, "Characterization of Spray-dried Yttrium Aluminum Garnet Powder," *Kor. J. Ceram.*, **1** [1] 35-9 (1995).
 9. J.-G. Li, T. Ikegami, J.-H. Lee, and T. Mori, "Low-temperature Fabrication of Transparent Yttrium Aluminum Garnet (YAG) Ceramics without Additives," *J. Am. Ceram. Soc.*, **83** [4] 961-63 (2000).
 10. G. Gowda, "Synthesis of Yttrium Aluminates by the Sol-Gel Process," *J. Mater. Sci. Lett.*, **5** [10] 1029-32 (1986).
 11. O. Yamaguchi, K. Takeoka, K. Hirota, H. Takano, and A. Hayashida, "Formation of Alkoxy-derived Yttrium Aluminium Oxides," *J. Mater. Sci.*, **27** 1261-64 (1992).
 12. S.-M. Sim, K. Keller, and T.-I. Mah, "Phase Formation in Yttrium Aluminum Garnet Powders Synthesized by Chemical Methods," *J. Mater. Sci.*, **35** 713-17 (2000).
 13. T. Tachiwaki, M. Yoshinaka, K. Hirota, T. Ikegami, and O. Yamaguchi, "Novel Synthesis of $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG) Leading to Transparent Ceramics," *Soild State Comm.*, **119** 603-06 (2001).
 14. R. Manalert and M. N. Rahaman, "Sol-gel Processing and Sintering of Yttrium Aluminum Garnet (YAG) Powders," *J. Mater. Sci.*, **31** 3453-58 (1996).
 15. N. Matsushita, N. Tsuchiya, K. Nakatsuka, and T. Yanagitani, "Precipitation and Calcination Processes for Yttrium Aluminum Garnet Precursors Synthesized by the Urea Method," *J. Am. Ceram. Soc.*, **82** [8] 1977-84 (1999).
 16. M. Nyman, J. Caruso, M. J. Hampden-Smith, and T. T. Kodas, "Comparison of Solid-state and Spray-pyrolysis Synthesis of Yttrium Aluminate Powders," *J. Am. Ceram. Soc.*, **80** [5] 1231-38 (1997).
 17. S. Roy, L. Wang, W. Sigmund, and F. Aldinger, "Synthesis of YAG Phase by a Citrate Combustion Technique," *Mat. Lett.*, **39** 138-41 (1999).
 18. A. Ikesue, T. Kinoshita, K. Kamata, and K. Yoshida, "Fabrication and Optical Properties of High-performance Polycrystalline Nd:YAG Ceramics for Solid-state Lasers," *J. Am. Ceram. Soc.*, **78** [4] 1033-40 (1995).
 19. K. Okazaki, "Advanced Technology in Electroceramics in Japan," *Ceram. Bull.*, **67** [12] 1946-49 (1988).
 20. B.-J. Chung, J.-Y. Park, and S.-M. Sim, "Synthesis of Yttrium Aluminum Garnet Powder by a Citrate Gel Method," *J. Ceram. Proc. Res.*, **4** [3] 145-50 (2003).