

**ИССЛЕДОВАНИЕ СВОТТЕХНИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ЛЮМИНОФОРА  
Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Ce,Gd, ПОЛУЧЕННОГО МЕТОДОМ САМОРАСПРОСТРАНЯЮЩЕГОСЯ  
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО СИНТЕЗА**

© 2016 г. О.Б. ТОМИЛИН, Е.Е. МУРЮМИН, С.Ю. ЩИПАКИН, М.В. ФАДИН, А.С. ЗВОНЦОВА

Мордовский государственный университет им. Н.П. Огарёва, г. Саранск  
e-mail: mur\_ee@mail.ru

**Введение**

В современном производстве источников оптического излучения и средств отображения информации в большинстве случаев применяются алюминатные люминофоры, активированные редкоземельными элементами, которые характеризуются «узкополосными» спектрами излучения, высоким квантовым выходом и хорошей эксплуатационной стабильностью. Среди них известны люминофоры на основе иттрий-гадолиний-алюминиевого граната, активированного Ce(III) (ИГАГ:Ce<sup>3+</sup>), который излучает в желто-оранжевой области спектра [1-3].

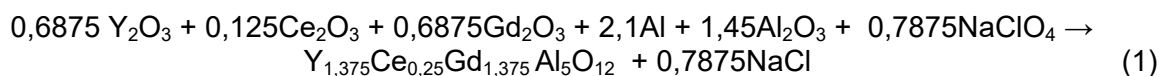
В связи с тем, что в промышленности люминофоры на основе ИГАГ получают только традиционными энергозатратными способами [4, 5], разработка энергосберегающего метода синтеза таких люминофоров является актуальной задачей.

**Цель работы**

Целью работы являлось исследование возможности синтеза люминофора состава ИГАГ:Ce<sup>3+</sup> методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС), а также исследование светотехнических характеристик синтезированного люминесцентного материала.

**Методы исследования**

Синтез люминофора ИГАГ:Ce<sup>3+</sup> методом СВС может быть представлен следующим уравнением:



Исходная шихта в стехиометрическом соотношении уравнения (1) гомогенизировалась в планетарной мельнице. Процесс СВС проводился в атмосферных условиях [6]. Температуру синтеза измеряли термометрическим методом с использованием вольфрам-рениевой термодомы ВР5/20. Установлено, что наиболее благоприятный температурный режим процесса СВС, обеспечивающий максимальный выход целевого продукта, достигается при соотношении Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> = 2,1/1,45. При этом максимальная температура синтеза составляла 2186 °С. Степень чистоты исходных веществ контролировалась методом рентгенофлуоресцентного анализа на рентгенофлуоресцентном спектрометре ARL 9900.

Для удаления непрореагировавших компонентов шихты и продуктов истирания элементов размольного оборудования проводилась обработка полученных образцов 5%-ным раствором соляной кислоты [7]. Рентгенофазовый и рентгеноструктурный анализ полученных образцов проводился на рентгеновском дифрактометре Empyrean

PANanalytical. Измерение светотехнических характеристик осуществляли на спектро-  
радиометре MULIT-CHANNELSPFCTRORADIOMETER (OL 770). в оптическом диапа-  
зоне 380 – 750 нм.

### Результаты и обсуждения исследования

Проведенный рентгенофазовый анализ образцов показал следующий качест-  
венный состав фаз продуктов СВС:

- 1)  $Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$  – основная фаза;
- 2)  $Y_2O_3$  – побочная фаза.

Рентгенограмма целевого продукта  $Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$ , совпадающая с ба-  
зой PDF2 представлена на рис. 1.

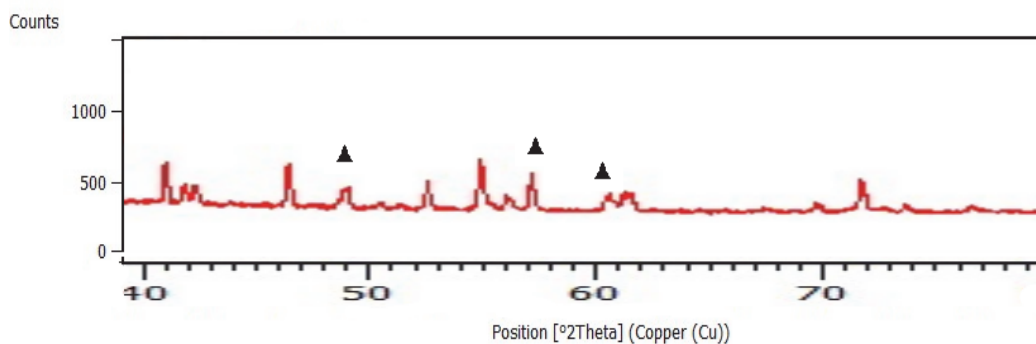


Рис. 1. Рентгенограмма  $Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$  с соотношением  $Al/Al_2O_3 = 1,9/1,55$ . ▲ соответствует  $Y_2O_3$ .

Для полученного методом СВС люминофоров на основе ИГАГ исследованы  
следующие светотехнические характеристики: длина волны излучения люминесцен-  
ции, цветовые координаты (диаграмма цветности), коэффициент цветопередачи и цве-  
товая температура.

На рис.2 представлен измеренный спектр излучения люминофора  
 $Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$ . Возбуждение люминофора осуществлялось при помощи диода  
синего свечения с максимумом излучения равным 474 нм.

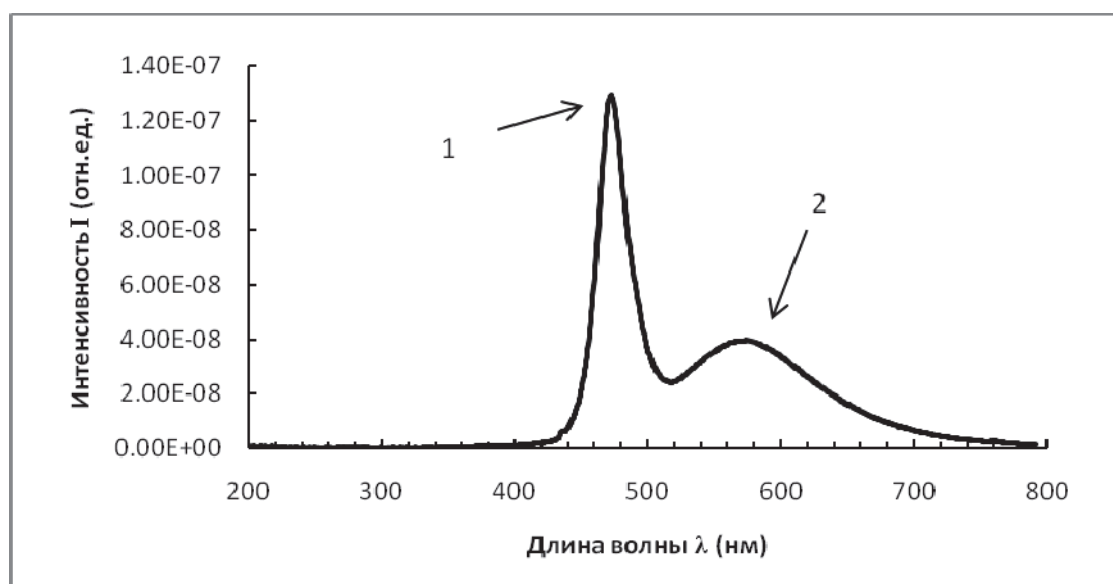


Рис. 2. Спектр излучения удаленного люминофора  $Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$ , 1-пик  
излучения синего светодиода (474 нм); 2-пик излучения люминофора (581 нм).

Для изучения влияния содержания Gd на светотехнические характеристики конечного продукта при синтезе варьировалось стехиометрическое отношение в шихте между  $Y_2O_3$  и  $Gd_2O_3$ . Стехиометрическое соотношение  $Y_2O_3/Gd_2O_3$  в шихте изменялось от 0,945/0,405 до 0,405/0,945. В качестве эталона был взят люминофор ЛФЖ-7 ( $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ ). Измеренные светотехнические характеристики ИГАГ: $Ce^{3+}$  и эталона представлены в табл. 1.

Таблица 1

№	Соотношение $Y_2O_3/Gd_2O_3$ в шихте	Составы	Координаты цветности		Цветовая температура, К	Длина волны, нм
			x	y		
1	0,945/0,405	$Y_{1,89}Ce_{0,25}Gd_{0,81}Al_5O_{12}$	0,2944	0,3250	7624	577
2	0,6875/0,6875	$Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$	0.3578	0.3995	6618	581
3	0,405/0,945	$Y_{0,81}Ce_{0,25}Gd_{1,89}Al_5O_{12}$	0.3101	0.3322	4758	583
4	-	ЛФЖ-7 $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$	0.2598	0.3361	9712	560

Из табл. 1 следует, что все полученные люминофоры являются люминофорами желтого свечения, так как разброс в координатах цветности, относительно эталона, соответствует допустимым значениям ( $0,2944 < x < 0,3578$ ;  $0,3250 < y < 0,3995$ ). Для эталонного люминофора ЛФЖ-7 координаты цветности имели значения:  $x=0,2598$ ;  $y=0,3361$ . При увеличении содержания гадолиния в образце происходит смещение пика излучения в длинноволновую область (от 577 до 583 нм). Цветовая температура уменьшается от 7624 до 4758 К с увеличением содержания гадолиния. Для эталона это значение составляет 9712 К.

На рис. 3 приведены спектры излучения люминофоров с различным содержанием Gd, измеренные при возбуждении люминесценции светодиодом (максимум излучения – 474 нм).

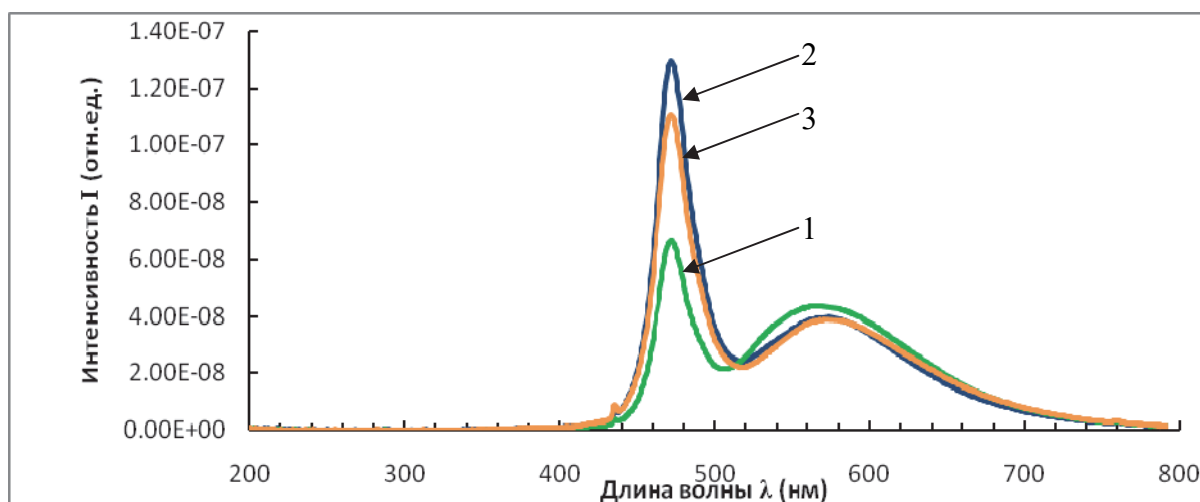


Рис. 3. Спектр излучения люминофоров ИГАГ: $Ce^{3+}$  :  
 1)  $Y_{1,89}Ce_{0,25}Gd_{0,81}Al_5O_{12}$ ; 2)  $Y_{1,375}Ce_{0,25}Gd_{1,375}Al_5O_{12}$ ; 3)  $Y_{0,81}Ce_{0,25}Gd_{1,89}Al_5O_{12}$ .

Из рисунка видно, что при увеличении содержание Gd происходит незначительное уменьшение интенсивности излучения люминофора в области 577-583 нм.

### Выводы

С применением энергосберегающего метода СВС синтезирован люминофор на основе иттрий-гадолиний-алюминиевого граната, активированного  $Ce(III)$ . Методом

рентгеноструктурного анализа доказано получение данного люминофора. Исследованы светотехнические характеристики полученного люминофора.

Публикация выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ в рамках госзадания, проект №1384.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Shi H., Zhu C., Huang J., Chen J., Chen D., Wang W., Wang F., Cao Y., Yuan X.* Luminescence properties of YAG:Ce, Gd phosphors synthesized under vacuum condition and their white LED performances // *Opt. Mater. Express*, 2014. - V.4. - №4.- P.649–655.
2. *Lin Y.S., Liu R.S., Cheng B.-M.* Investigation of the luminescent properties of Tb<sup>3+</sup>-substituted YAG:Ce,Gd phosphors // *J. Electrochem. Soc.*, 2005. - V.152. - №6. – P. J41–J45.
3. *Chen H., Yun S., Xiqi F., Yubai P.* AG:Ce/(Gd,Y)AG:Ce dual-layered composite structure ceramic phosphors designed for bright white light-emitting diodes with various CCT // *Optics Express*, 2015. - V. 23. - №14. - P. 18243-18255.
4. *Нейман А.Я., Ткаченко Е.В., Квичко Л.А., Коток Л.А.* Условия и механизм твердофазного синтеза алюминатов иттрия // *Журнал неорганической химии*, 1980. - Т.25. - №9. - С.2340-2345.
5. *Глушкова В.Б., Зиновьев С.Ю.* Синтез алюмогранатов РЗЭ и иттрия при совместном осаждении гидроксидов // *Изв. АН СССР. Неорганические материалы*, 1986. – Т.22. - №7. - С.1219-1222.
6. Патент РФ № 2455336 МПК С 09 К 11/78, 11/80 Способ получения люминофоров / М. В. Кузнецов, Ю. Г. Морозов, О. Б. Томилин, А. С. Федоренко – 2010151620/05 заявлено 15.12.2010; опубликовано 10.07.2012. – 9 с.
7. Патент РФ № 2371464 МПК С 09 К 11/64, 11/80 Способ повышения интенсивности свечения алюминатных люминофоров / А. М. Андриевский – 2008100956/15; заявлено 18.01.2008; опубликовано 27.10.2009. – 8 с.