

Йе Ко Ко Хтун, Жуков А.В., Чижевская С.В.  
(РХТУ им. Д.И. Менделеева, Москва, Россия)

## ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОРОШКОВ YAG:Ce, СИНТЕЗИРОВАННЫХ ДЛЯ ЛЮМИНЕСЦЕНТНОЙ КЕРАМИКИ МЕТОДОМ СЖИГАНИЯ С МОЧЕВИНОЙ

Порошки на основе иттрий-алюминиевого граната (YAG), допированного лантанидами или другими переходными элементами, широко используются для изготовления таких функциональных материалов, как рабочие тела лазеров, сцинтилляционные детекторы, люминофоры и т.п. [1]. В частности, сцинтилляционные поликристаллы на основе иттрий-алюминиевого граната, допированного  $\text{Ce}^{3+}$  (YAG:Ce<sup>3+</sup>), обладают высоким световыходом люминесценции и радиационной стойкостью [2].

Порошки YAG:Ce<sup>3+</sup> состава  $\text{Y}_{3-x}\text{Ce}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$  можно синтезировать различными методами: соосаждением, золь-гель, твердофазным, гидротермальными и СВС методами [3]. Общие требования, предъявляемые к порошкам: слабая агрегируемость, узкое распределение частиц по размерам.

В настоящей работе представлен материал по изучению свойств порошков YAG:Ce<sup>3+</sup> для люминесцентной керамики, синтезированных методом сжигания с мочевиной в качестве органического «топлива». В качестве исходных веществ использовали  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  «осч»,  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  «хч»,  $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  «хч» навески которых растворяли в воде. Компоненты смешивали в заданных соотношениях для получения порошков состава  $\text{Y}_{3-x}\text{Ce}_x\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , где  $x = 0,005 \div 0,06$  (0,17 ÷ 2 мол. %). Смешанный водно-органический раствор нитратов металлов и мочевины (М) с отношением  $\text{M}:\text{NO}_3^- = 0,313$  упаривали в кварцевом стакане до состояния геля, который помещали на 5 мин в нагретую до 500°C муфельную печь, после чего подвергали термообработке в течение 5 ч при 1000°C в восстановительной атмосфере (среде CO), препятствующей переходу  $\text{Ce}^{3+}$  в  $\text{Ce}^{4+}$ .

Синтезированные порошки изучали методами спектрально-люминесцентного анализа – QE6500 (Ocean Optics), рентгенофазового анализа – D2 PHASER (Bruker) и электронной микроскопии – Vega-3 (TESCAN).

На рис. 1 представлены спектры люминесценции порошков с разным содержанием церия, синтезированных при температуре 900°C.

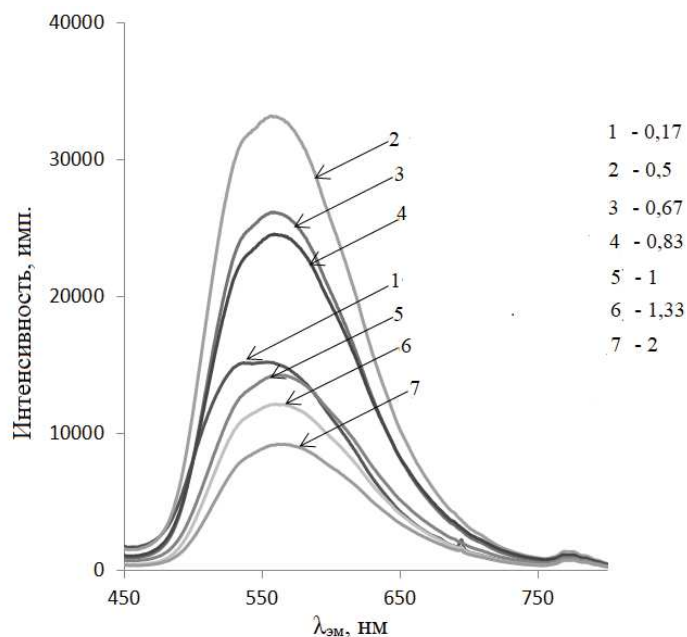


Рис 1. Спектры люминесценции порошков YAG:Ce<sup>3+</sup> с разным содержанием церия Ce<sup>3+</sup> (мол. %)

Можно видеть, что интенсивность люминесценции порошков YAG:Ce<sup>3+</sup> с увеличением концентрации Ce<sup>3+</sup> проходит через максимум (0,5 мол. %). Наличие экстремума связано с тем, что с увеличением концентрации Ce<sup>3+</sup> повышается число центров люминесценции и уменьшается расстояние между соседними центрами свечения в фазе YAG:Ce<sup>3+</sup>, однако, при превышении критической концентрации взаимодействие между центрами вызывает гашение люминесценции.

На рис. 2 представлено влияние температуры термообработки прекурсора YAG:Ce<sup>3+</sup> (0,5 мол. % Ce<sup>3+</sup>) на люминесцентные свойства порошков синтезированных образцов.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что с повышением температуры термообработки прекурсора с 800 до 900°C интенсивность люминесценции образцов увеличивается, а свыше 900°C начинает снижаться и тем значительно, чем выше температура.

С повышением температуры термообработки прекурсора увеличивается размер зерен кристаллов и агрегация последних, что ухудшает люминесцентные свойства материала. Таким образом, оптимальная температура термообработки прекурсора для получения высокой интенсивности люминесценции синтезированных порошков не должна превышать 900°C.

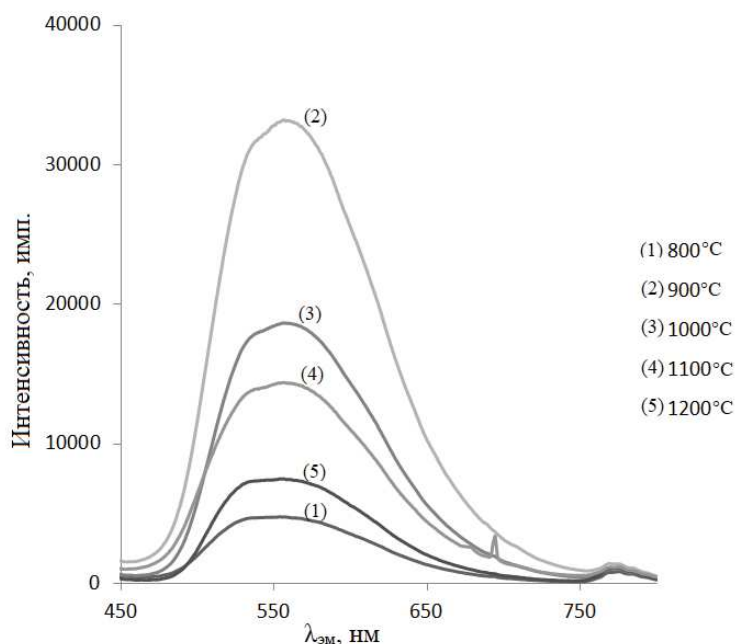


Рис 2. Спектры люминесценции образцов  $Y_{3-x}Ce_xAl_5O_{12}$  (0,5 мол. %  $Ce^{3+}$ ) после термообработки их при разных температурах

Люминофор  $YAG:Ce^{3+}$ , содержащий 0,5 мол. %  $Ce^{3+}$ , синтезированный при  $900^\circ C$ , был исследован методом РФА (рис. 3) и СЭМ (рис. 4).

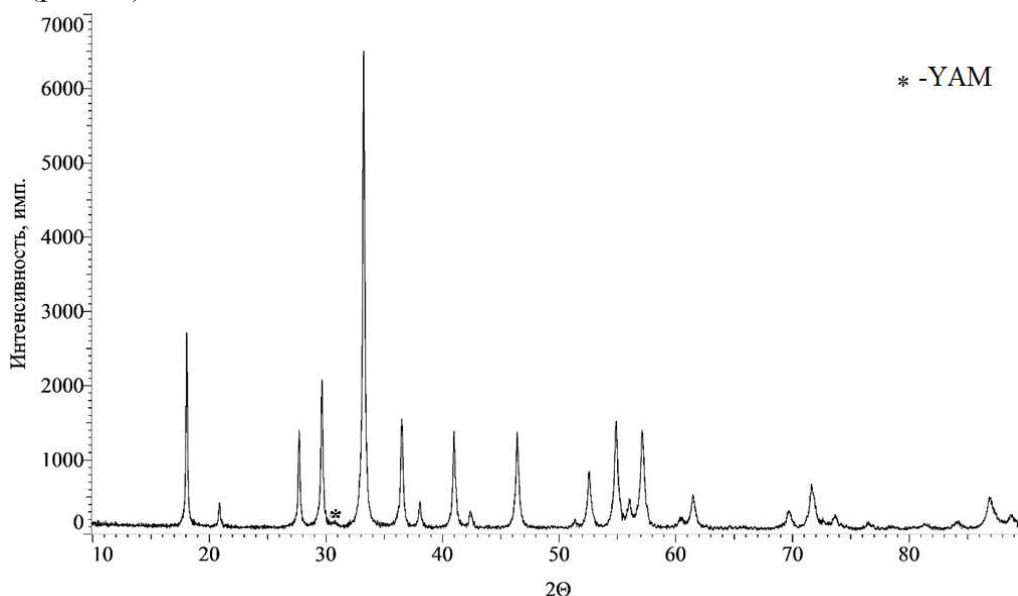


Рис. 3. Дифрактограмма порошка люминофора  $YAG:Ce^{3+}$  (0,5 мол. %  $Ce^{3+}$ ) после термообработки прекурсора при  $900^\circ C$

По данным РФА в образце образуется фаза YAG с параметром решетки  $a = 12,0662 \text{ \AA}$  и размером кристаллитов 41 нм. В качестве примесной присутствует около 2% фазы YAM ( $Y_2Al_4O_9$ , №83-0933).

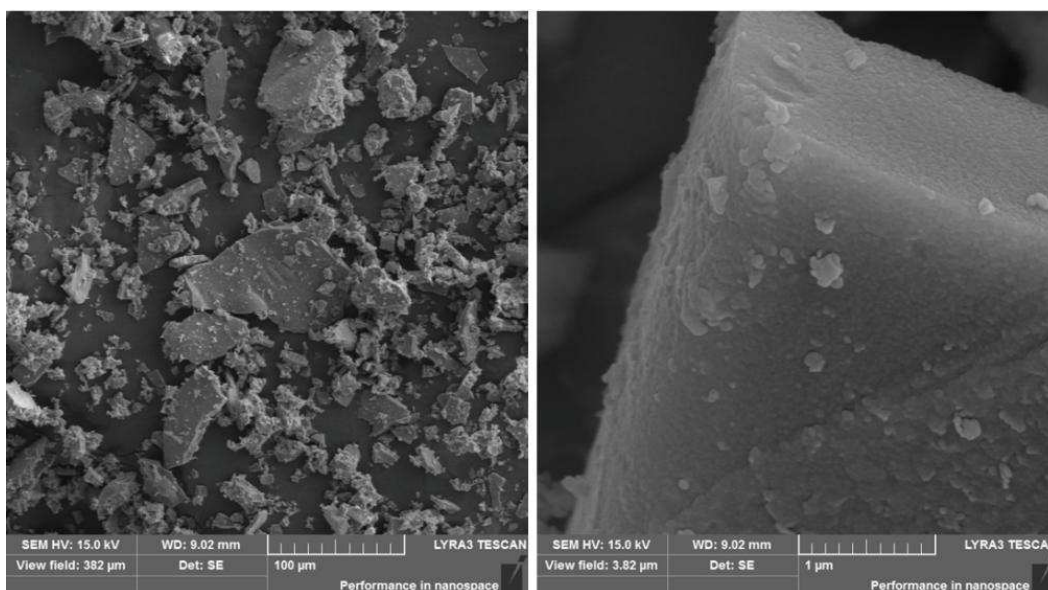


Рис. 4. СЭМ порошка люминофора  $\text{YAG:Ce}^{3+}$  (0,5 мол. %  $\text{Ce}^{3+}$ ,  $900^\circ\text{C}$ )

В порошке люминофора присутствуют агрегаты размером до 120 мкм, состоящие из плотно прилегающих друг к другу наночастиц, создающих ровную гладкую поверхность, что, очевидно, способствует повышению интенсивности люминесценции образцов.

Полученные результаты позволяют заключить, что метод сжигания прекурсоров, содержащих мочевины, нитраты РЗЭ и алюминия, позволяет синтезировать порошки люминофоров  $\text{YAG:Ce}^{3+}$ , которые могут быть использованы для изготовления люминесцентной керамики.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Нагубнева М.И., Исаченков М.В., Жуков А.В., Чижевская С.В. Гетерофазный синтез иттрий-алюминиевого граната, допированного церием // Успехи в химии и химической технологии. 2017. Т. XXXI. № 10. С. 46-48.
2. Lin L.Y, Leitner D, Benatti C. at al. Study of scintillation stability in KBr,  $\text{YAG:Ce}$ ,  $\text{CaF}_2:\text{Eu}$  and  $\text{CsI:Tl}$  irradiated by various-energy protons // Proceedings of IBIC2014, Monterey, CA, USA. P. 251-252.
3. Tucureanu V, Matei A, and Avram A.M. Synthesis and characterization of  $\text{YAG:Ce}$  phosphors for white LEDs // Opto-Electronics Review. 2015. №. 4. P. 239-251.