

TỔNG HỢP BỘT HUỖNH QUANG $Y_3Al_5O_{12}$: Eu (III) PHÁT XẠ ÁNH SÁNG ĐỎ XA BẰNG PHƯƠNG PHÁP ĐỒNG KẾT TỦA

Lê Diệu Thu^{1*}, Đỗ Quang Trung², Nguyễn Thị Thanh Hoa²,
Trần Đại Lâm³, Trịnh Xuân Anh¹

¹Viện Kỹ thuật Hóa học, Trường Đại học Bách khoa Hà Nội, Số 1 Đại Cồ Việt, Hà Nội

²Khoa Hóa học cơ bản, Trường Đại học Công nghiệp Quảng Ninh, Đông Triều, Quảng Ninh

³Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm KHCNVN, 18 Hoàng Quốc Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

*Email: thu.ledieu@hust.edu.vn

Đến Tòa soạn: 28/8/2015; Chấp nhận đăng: 29/10/2015

TÓM TẮT

Bột huỳnh quang $(Y_{0,93}Eu_{0,07})_3Al_5O_{12}$ đã được tổng hợp thành công theo phương pháp đồng kết tủa với tác nhân tạo kết tủa là $NH_3.H_2O$. Các kết quả phân tích phổ nhiễu xạ tia X (XRD) chỉ ra mẫu thu được là đơn pha với sự hình thành tinh thể diễn ra ở khoảng 1000 °C trong 3 giờ, không có sự xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng cho các pha trung gian của mạng nền YAG cũng như các đỉnh nhiễu xạ liên quan đến các pha của tạp chất tạo ra. Các kết quả phân tích phổ huỳnh quang (PL) cho thấy, có 4 dải phát xạ đặc trưng trong vùng đỏ từ 570 – 720 nm với các đỉnh là 592 nm, 598 nm, 611 nm và 710 nm. Sự xuất hiện đỉnh phát xạ có cực đại tại 710 nm với cường độ huỳnh quang nổi trội tương ứng với khả năng phát xạ trong vùng ánh sáng đỏ xa (infrared) cho thấy tiềm năng ứng dụng của loại vật liệu này trong chế tạo các thiết bị chiếu sáng sử dụng trong chiếu sáng nông-ngư nghiệp công nghệ cao.

Từ khóa: Yttri aluminum garnet, đồng kết tủa, bột huỳnh quang, huỳnh quang, ánh sáng đỏ.

1. MỞ ĐẦU

Các vật liệu huỳnh quang được biết đến từ rất lâu là vật liệu phù hợp cho các linh kiện huỳnh quang và thiết bị hiển thị như đèn huỳnh quang ba phổ (tricolor lamps), ống tia âm cực (cathode ray tubes-CRTs), màn hiển thị tinh thể lỏng (LCDs), màn hiển thị phát xạ trường (FEDs) và bảng hiển thị plasma (PDPs) [1]. Bột huỳnh quang pha tạp các ion đất hiếm đã được nghiên cứu từ lâu cho các ứng dụng chiếu sáng và các thiết bị hiển thị nói trên. Ví dụ hiệu suất và hệ số trả màu của đèn phụ thuộc chính vào cường độ đỉnh phát xạ của các bột huỳnh quang phát xạ ánh sáng đỏ, xanh lục và xanh lam. Bột huỳnh quang Y_2O_3 : Eu với đỉnh phát xạ chính ở 611 nm là vật liệu huỳnh quang tuyệt vời do có hệ số trả màu cao. Tuy nhiên, hiệu suất phát quang của đèn huỳnh quang có thể tăng mạnh nếu cường độ huỳnh quang của bột đỏ chuyển dịch về phía bước sóng ngắn hơn với sự giảm hệ số trả màu trong vùng cho phép. Nếu đỉnh phát

xạ của bột đỏ dịch chuyển từ 611 nm về 595 nm trong khi giữ nguyên đỉnh phát xạ của bột xanh lục và xanh lam thì hệ số trả màu có thể rơi xuống khoảng 60 - 65 nhưng hiệu suất phát quang lại tăng thêm 12% [2]. Điều này đã mở ra một xu thế mới rằng có thể thay thế bột $Y_2O_3:Eu$ bằng một loại bột huỳnh quang khác với ion pha tạp Eu^{3+} trên mạng nền.

YAG ($Y_3Al_5O_{12}$, garnet) có cấu trúc tinh thể dạng lập phương tâm khối với các ion nhôm định cư ở tâm bát diện và tâm tứ diện với số phối trí 6 và 4 (tương ứng), trong khi đó ion yttri (số phối trí là 8) định cư ở tâm của Hình mười hai mặt chứa các khối tứ diện và bát diện của nhôm [3]. YAG được biết đến là vật liệu có độ cứng lớn, khả năng dẫn nhiệt tốt và bền hóa cao. Khi pha tạp thêm ion đất hiếm Eu^{3+} , thông thường ion Eu^{3+} sẽ thế vào vị trí của ion Y^{3+} , chiếm tâm mười hai mặt với Hình thái D_2 và giải phóng ra các tâm phát quang [4].

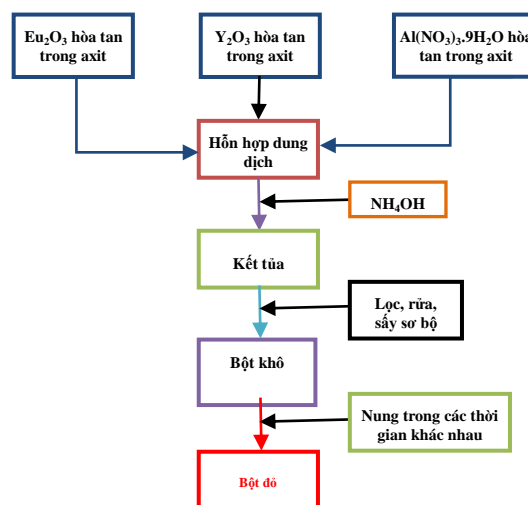
Thông thường, bột huỳnh quang YAG pha tạp các ion đất hiếm thường được tổng hợp bằng phản ứng pha rắn với nhiệt độ Hình thành pha lên đến 1600 °C. Tuy nhiên, để đạt hiệu suất sản phẩm cao đòi hỏi quá trình trộn lẫn các tiền chất sâu và kỹ, đồng thời trong sản phẩm vẫn còn tồn tại các pha trung gian như $Y_4Al_2O_9$ (YAM, monoclinic) và $YAlO_3$ (YAP, peroskite). Để hạn chế những nhược điểm này của phản ứng pha rắn, rất nhiều các phương pháp đã được nghiên cứu để tổng hợp YAG hoặc bột huỳnh quang trên nền YAG như phương pháp đốt cháy [5], sol-gel [6], phương pháp Pechini [7], phương pháp kết tủa [8-11] và phương pháp thủy nhiệt [12]... Trong nghiên cứu này, chúng tôi đã lựa chọn phương pháp đồng kết tủa sử dụng tác nhân $NH_3:H_2O$ làm tác nhân tạo kết tủa để tổng hợp vật liệu. Tính chất và Hình thái học của vật liệu tổng hợp được sẽ được thảo luận kỹ trong các phần tiếp theo.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Hóa chất

Các hóa chất tinh khiết Y_2O_3 (99,99 %, Aldrich), Eu_2O_3 (99,99 %, Aldrich), HNO_3 (65 %, Merck), $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ (98,5 %, Merck) và dung dịch NH_3 (25 %, Merck) được dùng trực tiếp để tổng hợp vật liệu mà không cần bất kỳ quá trình tinh chế nào.

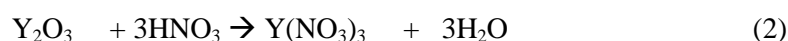
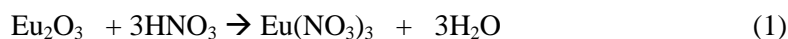
2.2. Quy trình tổng hợp



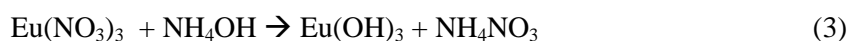
Hình 1. Sơ đồ tổng hợp bột đỏ YAG: Eu theo phương pháp đồng kết tủa.

Bột đồ $Y_3Al_5O_{12}:Eu^{3+}$ (YAG:Eu³⁺) được tổng hợp theo phương pháp đồng kết tủa sử dụng dung dịch NH_3 làm tác nhân tạo kết tủa (Hình 1), theo đó các nguyên liệu ban đầu (bột europi oxit, bột yttri oxit và muối nhôm nitrat) được hòa tan vào nhau theo tỉ lệ về số mol 5:3 của ion Al^{3+} và Y^{3+} trong dung dịch axit nitric 65 %. Các hỗn hợp này được trộn đều với nhau trên máy khuấy từ gia nhiệt cho đến khi thu được dung dịch trong suốt. Bổ sung dung dịch ammoniac làm tác nhân kết tủa và điều chỉnh độ pH sao cho kết tủa là hoàn toàn (pH ~ 8 - 9). Lọc, rửa kết tủa bằng nước cất nhiều lần rồi sấy sơ bộ ở 80 °C trong một ngày. Bột khô thu được được đem nghiền sơ bộ rồi nung ở các nhiệt độ khác nhau.

Các phương trình phản ứng trong suốt quá trình tổng hợp được mô tả như sau:



Sau khi trộn các dung dịch ta được hỗn hợp dung dịch gồm muối $Eu(NO_3)_3$, $Y(NO_3)_3$ và $Al(NO_3)_3$. Khi tiến hành kết tủa dung dịch bằng NH_4OH , thì $Eu(NO_3)_3$ kết tủa thành $Eu(OH)_3$, $Al(NO_3)_3$ kết tủa thành $Al(OH)_3$ còn $Y(NO_3)_3$ kết tủa thành $Y(OH)_3$ theo các phản ứng dưới đây:



Về lí thuyết, Al sẽ kết tủa trước do có tích số hòa tan bé nhất ($T \approx 10^{-34}$) sau đó đến Y và Eu trên nền nhôm để tạo vật liệu YAG. Nhằm khảo sát Hình thái cấu trúc và tính chất quang của vật liệu, chúng tôi đã khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ nung và thời gian nung. Sử dụng các phương pháp phân tích vật lí như gián đồ nhiễu xạ tia X (X- Rays) (Philip Xpert Pro XRD diffractometer, 35 kV, 40 mA, $\lambda_{CuK\alpha 1} = 1,540560$; step = 0,03) kính hiển vi điện tử quét phát xạ trường (FESEM - S4800, Hitachi, Nhật Bản), phổ huỳnh quang (PL - Nanolog HORIBA Jobin Yvon với nguồn kích thích đèn Xenon bước sóng 254 nm tại nhiệt độ phòng) nhằm khảo sát kích thước tinh thể, Hình thái bề mặt của vật liệu.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Phân tích nhiệt TG-DSC

Mẫu sau khi tổng hợp được đem đi tiến hành phân tích nhiệt TG-DSC trong điều kiện không khí với tốc độ gia nhiệt 10 °C/phút trong khoảng nhiệt độ từ nhiệt độ phòng đến 800 °C. Kết quả được chỉ ra trên Hình 2. Từ Hình 2 chúng ta thấy, ở 61 °C; 92 °C; 134 °C có các pic thu nhiệt tương ứng với sự giảm khối lượng 10,1 %; 8 % và 18,2 % trong mẫu. Điều này có thể được giải thích là do sự mất nước vật lí. Tại 173 °C; 261 °C và 293 °C cũng xuất hiện các pic thu nhiệt với tổng giảm khối lượng khoảng 42 %. Nguyên nhân dẫn đến hiện tượng giảm khối lượng tương đối lớn nói trên có thể là do sự bay hơi nước hóa học hay các quá trình dehydrat hóa các hydroxit tạo thành trong quá trình phản ứng. Ở 306 °C tồn tại một pic tỏa nhiệt với sự thay đổi khối lượng nhỏ (~ 6 %). Điều này có thể được giải thích là do sự bay hơi của NH_4NO_3 tạo thành trong quá trình Hình thành mẫu và bắt đầu Hình thành pha vô định Hình YAG:Eu³⁺ [5]. Từ khoảng 450 °C trở đi hầu như không có sự giảm khối lượng nào đáng kể xảy ra do vậy pha vô định Hình đã chuyển thành các hạt tinh thể. Từ các kết quả trên, chúng tôi đã lựa chọn nhiệt độ nung mẫu trong khoảng từ 450 °C trở đi.

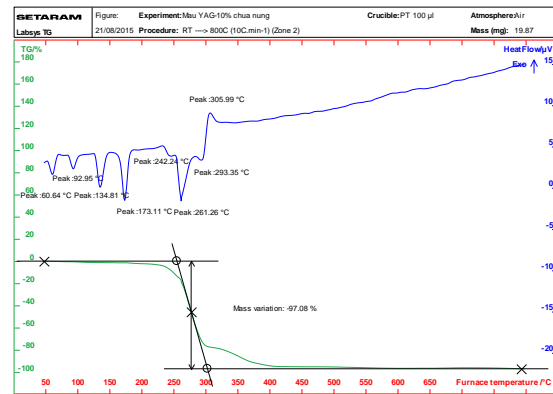
3.2. Thành phần pha

Các kết quả XRD của mẫu được chỉ ra trên Hình 3. Dựa trên các kết quả phân tích nhiệt (Hình 2), mẫu hoàn toàn có thể bắt đầu nung ở nhiệt độ 450 °C. Tuy nhiên, khi tiến hành nung mẫu ở 600 °C, các kết quả XRD chỉ ra rằng, chưa có sự hình thành dạng tinh thể YAG nào rõ rệt chứng tỏ rằng ở nhiệt độ này bột vẫn ở trạng thái vô định hình. Khi tăng nhiệt độ lên 800 °C bắt đầu có sự hình thành pha tinh thể ở góc $2\theta \approx 34^\circ$ chứng tỏ rằng bắt đầu có sự chuyển pha từ vô định hình thành pha tinh thể. Khi tăng nhiệt độ nung lên 1000 °C, hầu hết các đỉnh nhiễu xạ nhận được đặc trưng cho các mặt nhiễu xạ của mạng nền YAG với cường độ khá mạnh và rõ nét (theo thẻ chuẩn số 3300-40). Kết quả này cho thấy pha vô định hình đã chuyển hóa hoàn toàn thành YAG tinh thể và không có dấu hiệu nào của các thành phần tạp chứng tỏ mẫu thu được là đơn pha cũng như khẳng định quá trình tổng hợp không dẫn đến sự hình thành của các pha trung gian như $YAlO_3$ (YAP) và $Y_4Al_2O_9$ (YAM). Tiếp tục tăng nhiệt độ nung lên 1300 °C chúng ta thấy, độ sắc nét và cường độ các đỉnh nhiễu xạ tăng lên chứng tỏ rằng quá trình hình thành tinh thể đang hoàn thiện. Đỉnh chính của tinh thể lập phương YAG: Eu^{3+} nằm tại $2\theta \approx 34^\circ$ tương ứng với chỉ số mặt tinh thể Miller $\{4\ 2\ 0\}$ [13]. Như vậy, nhiệt độ kết tinh của bột YAG tổng hợp theo phương pháp đồng kết tủa thấp hơn nhiều so với phương pháp pha rắn từ cùng loại thành phần (1600 °C). Nhiệt độ kết tinh thấp liên quan đến kích thước tinh thể hoàn thiện của mẫu bột và mức độ trộn lẫn các cấu tử thành phần. Nhiệt độ kết tinh thấp mà vật liệu thu được là đơn pha góp phần cải thiện hiệu suất phát quang của vật liệu [14].

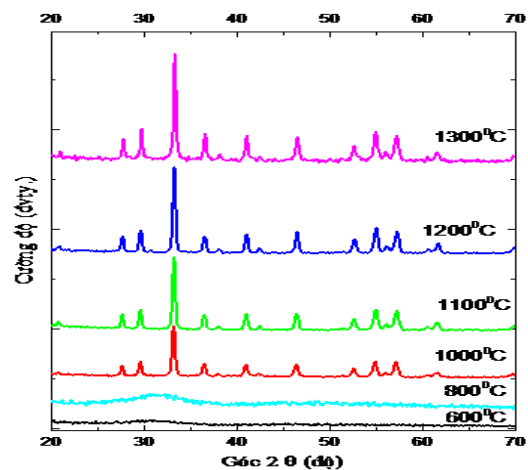
Áp dụng công thức Scherrer để tính kích thước hạt tinh thể, ta có: $d = \frac{0,89\lambda}{\beta \cos\theta}$

trong đó: d: kích thước hạt tinh thể; λ : bước sóng, $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$; β : độ rộng bán hử (full-width at half maximum - FWHM). Theo đó, kích thước tinh thể thu được có giá trị cỡ 25 nm.

Ngoài ra, các kết quả phân tích XRD cho ta thấy, khi pha tạp thêm ion đất hiếm Eu^{3+} vào mạng nền YAG nhưng chỉ xuất hiện các đỉnh nhiễu xạ đặc trưng cho mạng nền mà không có đỉnh nhiễu xạ của ion pha tạp chứng tỏ rằng ion pha tạp đã đi vào trong mạng nền và thay thế một phần ion Y^{3+} .

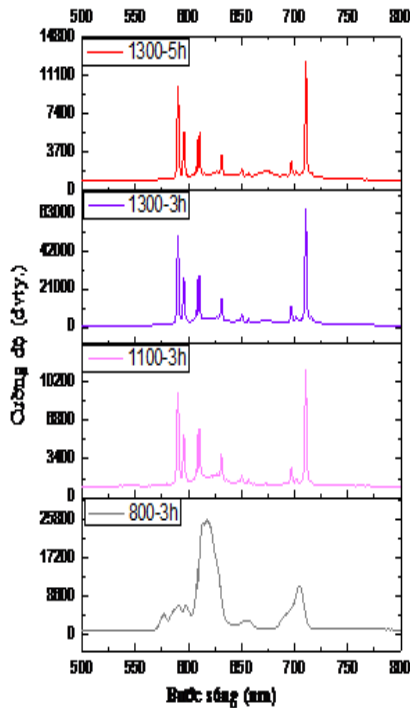


Hình 2. Đường TG-DSC của mẫu $(Y_{0,93}Eu_{0,07})_3Al_5O_{12}$

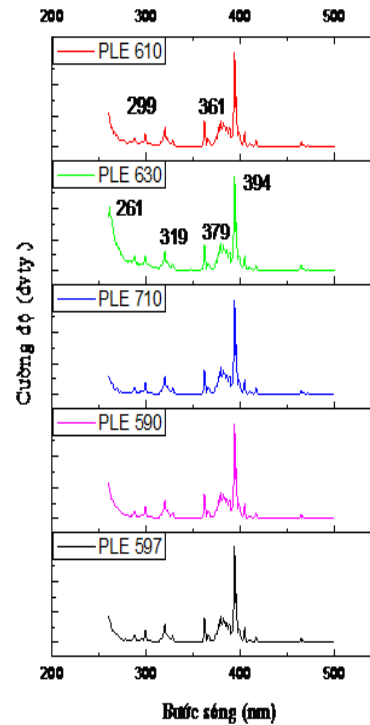


Hình 3. Giản đồ nhiễu xạ tia X của mẫu $(Y_{0,93}Eu_{0,07})_3Al_5O_{12}$ nung ở các nhiệt độ khác nhau.

3.3. Phổ huỳnh quang PL và phổ kích thích huỳnh quang PLE



Hình 4. Phổ PL của mẫu $(Y_{0.93}Eu_{0.07})_3Al_5O_{12}$ nung ở các nhiệt độ khác nhau.



Hình 5. Phổ PLE của mẫu $(Y_{0.93}Eu_{0.07})_3Al_5O_{12}$.

Phép đo phổ huỳnh quang là một phép đo hiệu quả nhằm đánh giá khả năng quang của vật liệu cũng như chất lượng tinh thể. Tính chất phát quang của vật liệu YAG: Eu^{3+} được đánh giá dựa trên phổ phát xạ (PL) của các mẫu.

Hình 4 là phổ huỳnh quang của mẫu $(Y_{0.93}Eu_{0.07})_3Al_5O_{12}$ dưới bước sóng kích thích 254 nm. Tất cả các mẫu YAG: Eu^{3+} thể hiện khả năng phát quang đỏ - cam và đỏ xa với các dải phát xạ đặc trưng. Trong dải từ 580 – 650 nm có năm đỉnh phát xạ là 590, 595, 610, 631 và 650 nm đặc trưng cho mức chuyển năng lượng từ $^5D_0 - ^7F_j$ ($j = 1 - 3$) và dải đỏ xa có đỉnh ở 710 nm tương ứng với mức chuyển $^5D_0 - ^7F_4$ của ion Eu^{3+} . Khi thay đổi nhiệt độ nung mẫu, với cùng điều kiện đo quang chúng ta thấy, ở 800 °C, phổ huỳnh quang của mẫu khác so với các mẫu ở nhiệt độ nung 1100 – 1300 °C chứng tỏ rằng ở 800 °C pha YAG mới bắt đầu được hình thành nhưng chủ yếu tồn tại dưới dạng vô định hình (kết quả này là hoàn toàn phù hợp với kết quả đo XRD trước đó). Ở 1100 °C, pha YAG đã hình thành hoàn thiện với các đỉnh phát xạ ổn định, không bị dịch phổ khi tiếp tục tăng nhiệt độ. Sự khác nhau lớn nhất trong khoảng nhiệt độ này là cường độ phát xạ của các mẫu tăng theo nhiệt độ nung và đạt đỉnh ở nhiệt độ 1300 °C trong 3 giờ (điều kiện đo các mẫu được giữ cố định như trọng lượng mẫu, các điều kiện cài đặt hệ đo và bước sóng kích thích). Từ các kết quả nêu trên, chúng tôi lựa chọn nhiệt độ nung tối ưu của mẫu là 1300 °C trong 3 giờ. Ngoài ra, từ Hình 4 chúng ta thấy, đối với tất cả các mẫu nung ở các nhiệt độ khác nhau (trừ 800 °C mới bắt đầu hình thành tinh thể), cường độ đỉnh phát xạ 710 nm (vùng

ánh sáng đỏ xa FR) trội hơn hẳn so với vùng đỏ cam (590 nm - RO). Tỷ lệ FR/RO nằm trong khoảng 1,25 - 1,35 với các mẫu nung ở các nhiệt độ khác nhau. Điều này có thể nói là một hiện tượng “bất thường” đối với ion Eu^{3+} vì trong cấu trúc không có đối xứng đảo, quy tắc lựa chọn bị mất tác dụng và thông thường quá trình chuyển đổi lưỡng cực điện - lực ${}^5\text{D}_0 - {}^7\text{F}_2$ chiếm ưu thế, các phát xạ lưỡng cực điện - lực ${}^5\text{D}_0 - {}^7\text{F}_{4,6}$ yếu. Trong cấu trúc có tính đối xứng đảo, các chuyển dời quang học giữa các mức $4f^n$ của ion đất hiếm bị cấm một cách nghiêm ngặt đối với chuyển dời lưỡng cực điện (quy tắc chọn lọc chẵn lẻ). Nó chỉ có thể xảy ra đối với các chuyển dời lưỡng cực từ theo quy tắc lựa chọn $\Delta J = 0, \pm 1$ (nhưng cấm $J = 0$ tới $J = 0$) nên chuyển dời ${}^5\text{D}_0 - {}^7\text{F}_1$ chiếm ưu thế [15]. Trong trường hợp này, các chuyển dời ${}^5\text{D}_0 - {}^7\text{F}_1$ và ${}^5\text{D}_0 - {}^7\text{F}_4$ là các chuyển dời nổi trội chứng tỏ rằng có thể ion Eu^{3+} đã chiếm tâm đối xứng đảo trong mạng tinh thể đồng thời chiếm tâm C_{3v} của mạng nền [16].

Về mặt lí thuyết, phổ huỳnh quang kích thích của mẫu YAG thu được trong vùng 200 nm - 450 nm gồm 2 dải kích thích chính. Dải thứ nhất định cư chủ yếu trong vùng 220 - 250 nm, chứa dải chuyển đổi điện tích (CTB) Eu^{3+} và O^{2-} với cường độ đỉnh tại 238 nm. Dải thứ hai trong vùng 280 - 425 nm bao gồm một vài đỉnh với cường độ yếu đặc trưng cho quá trình chuyển đổi điện tử f-f của ion Eu^{3+} . Tuy nhiên, trong quá trình đo, do vùng kích thích thứ nhất gần sát với ánh sáng của chân đèn đo nên chúng tôi chỉ thu được vùng kích thích thứ hai trong khoảng từ 260 - 450 nm (Hình 5). Các kết quả là hoàn toàn phù hợp với lí thuyết và các công bố trước đó [4,16] với các đỉnh kích thích đặc trưng của ion Eu^{3+} tại 261 nm, 299 nm, 319 nm (tương ứng với bước chuyển ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{H}_{5-7}$), 361 nm (${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_4$), 379 nm (${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{G}_{4-6}$), 394 nm (${}^7\text{F}_{0,1} \rightarrow {}^5\text{L}_6$) và 405 nm (${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_3$) trong đó cường độ đỉnh mạnh nhất tương ứng với bước chuyển ${}^7\text{F}_{0,1} \rightarrow {}^5\text{L}_6$ tại bước sóng 394 nm của ion Eu^{3+} .

4. KẾT LUẬN

Đã tổng hợp thành công bột đỏ YAG: Eu^{3+} 7 % mol theo phương pháp đồng kết tủa. Các kết quả phân tích phổ nhiễu xạ tia X, phổ huỳnh quang và kích thích huỳnh quang tại nhiệt độ phòng cho thấy điều kiện tối ưu để Hình thành pha tinh thể YAG và cho phát xạ mạnh nhất trong vùng ánh sáng đỏ, đỏ xa là ở nhiệt độ nung 1300°C trong thời gian 3 giờ. Với tỉ lệ FR/RO nằm trong khoảng 1,25 - 1,35 cho thấy tính chất “bất thường” của ion Eu^{3+} khi thay thế ion Y^{3+} trong mạng nền đồng thời mở ra khả năng ứng dụng vật liệu này trong chế tạo thiết bị chiếu sáng chuyên dụng.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Shin S. H., Kang J. H., Jeon D. Y., Choi S. H., Lee S. H., You Y. C., Zang D. S. - Cathodoluminescence change of $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}$ phosphors by incorporation of Zn ions, *Solid State Commun.* **135** (2005) 30-33.
2. Han R., Wang L., Chen K., Yang S. - Photoluminescence properties of $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Eu}$ nanocrystallites prepared by co-precipitation method using a mixed precipitator of NH_4HCO_3 and $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$, *Mat. Sci. and Engi. B* **166** (2010) 41-45
3. Dobrzycki L., Bulska E., Pawlak D.A., Frukacz Z., Wozniak K. - Structure of YAG crystals doped/substituted with Erbium and Ytterbium, *Inorg. Chem.* **43**(2004) 7656 - 7664.
4. Muresan L.E., Popovici E.J., Perhaita I., Indrea E., Silipas T.D. - Effect of the europium doping on the structural and luminescent properties of yttrium aluminum garnet, *Mat. Sci and Engi B* **178** (2013) 248-253.

5. Mukherjee S., Sudarsan V., Vatsa R.K., Tyagi A.K. - Luminescence studies on lanthanide ions (Eu^{3+} , Dy^{3+} and Tb^{3+}) doped YAG:Ce nano-phosphors, *J. Lumin.* **129** (2009) 69–72.
6. Hassanzadeh-Tabrizi S. A. - Low temperature synthesis and luminescence properties of YAG: Eu nanopowders prepared by modified sol-gel method, *Trans.Nonferrous Met.Soc.China* **21** (2011) 2443- 2447.
7. Hreniak D., Hölsä J., Lastusaari M., Strek W. - Effect of grain size and concentration of active ions on structural and optical behavior of Eu^{3+} -doped $Y_3Al_5O_{12}$ nanocrystallites, *J. Lumin.* **122–123** (2007) 91–94.
8. Li J.G., Ikegami T., Lee J.H., Mori T., Yajima Y. - Co-precipitation synthesis and sintering of yttrium aluminum garnet (YAG) powders: the effect of precipitant, *J. Eur. Ceram. Soc.* **20** (2000) 2395–2405.
9. Yuan F.L., Ryu H. - Ce-doped YAG phosphor powders prepared by co-precipitation and heterogeneous precipitation, *Mater. Sci. Eng. B* **107** (2004) 14–18.
10. Li X., Liu H., Wang J.Y., Zhang X.D., Cui H.M. - Preparation and properties of YAG nano-sized powder from different precipitating agent, *Opt. Mater.* **25** (2004) 407–412.
11. Su J., Zhang Q.L., Shao S.F., Liu W.P., Wan S.M., Yin S.T. - Phase transition, structure and luminescence of Eu:YAG nanophosphors by co-precipitation method, *J. Alloys Compd.* **470** (2009)306–310.
12. Hakuta Y., Seino K., Ura H., Adschiri T., Takizawa H., Arai K. - Production of phosphor (YAG: Tb) fine particles by hydrothermal synthesis in supercritical water, *J. Mater. Chem.* **9** (1999) 2671–2674.
13. Yongqing Z., Zihua Y., Shiwen D., Mande Q., Jian Z. - Synthesis and characterization of $Y_2O_3:Eu$ nanopowder via EDTA complexing sol–gel process, *Mat. Letters*, **57** (2003) 2901– 2906.
14. Ravichandran D., Roy R., Chakhovskoi A.G., Hunt C.E, White W.B., Erdei S. - Fabrication of $Y_3Al_5O_{12}:Eu$ thin films and powder for field- emission display applications, *J. Lumin.* **71(4)** (1997) 291-297.
15. Edgar A., *Lumin. Mater.*(2007).
16. Malashkevich G.E., Shevchenko G.P., Bokshits Yu.V., Kornienko A.A., Pershukevich P.P. - Eu^{3+} -based optical centers with a high efficiency of the $^5D_0 - ^7F_4$ transition in alumina gel films, *Opt. Spectrosc.* **98** (2005) 190–194.

ABSTRACT

SYNTHESIS OF FAR RED EMISSION PHOSPHORS $Y_3Al_5O_{12}:Eu^{3+}$ BY CO-PRECIPIATION METHOD

Le Dieu Thu^{1,*}, Do Quang Trung², Nguyen Thi Thanh Hoa², Tran Dai Lam³, Trĩnh Xuan Anh¹

¹*School of Chemical Engineering, Hanoi University of Science and Technology, No.1 Dai Co Viet street, Hanoi, Vietnam*

²*Faculty of General Chemistry, QuangNinh University of Industry, Yen Tho, Dong Trieu, QuangNinh, Vietnam*

³*Vietnam Academy of Science and Technology, 18th Hoang Quoc Viet street, Cau Giay district, Hanoi, Vietnam*

*Email: thu.ledieu@hust.edu.vn

Phosphors ($\text{Y}_{0.93}\text{Eu}_{0.07}\text{Al}_5\text{O}_{12}$) were synthesized successfully by co-precipitation method using $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ as precipitate reagent. The structural properties of samples were investigated with XRD method and XRD pattern indicated that samples are pure phase with the formation of crystalline is about 1000 °C for 3 h (the cubic garnet phase of YAG). There is no trace of any other phases. The luminescent properties were studied by measurement of emission and excitation spectra of samples. PL results showed that there are four broad emission peaks in the range of 570 - 720 nm. We studied the effect of heat-treatment on the emission intensity of PL and all results showed that the force dipole transition $^5\text{D}_0 - ^7\text{F}_4$ of ion Eu^{3+} is a dominant transition, corresponding to the wavelength of 710 nm (we called this region is far red). The synthetic phosphors promise the potential application in lighting devices and agricultural lighting devices.

Keywords: Yttri aluminum garnet, co-precipitation, phosphors, luminescence, far-red.