

二氧化钛纳米粒子局域等离子体共振增强 YAG 荧光粉发光特性研究

冯爱明¹, 王富强¹, 张宏^{1*}, 安鹏², 李旻晖^{1,3}, 王乐^{1*}

1. 中国计量大学光学与电子科技学院, 浙江 杭州 310018
2. 宁波工程学院电子与信息工程学院, 浙江 宁波 315211
3. 浙江大学现代光学仪器国家重点实验室, 浙江 杭州 310027

摘要 白光 LED 具有绿色节能、超长寿命、安全可靠等优点, 作为新型照明光源的重要发展方向, 如何提高白光 LED 的发光效率仍是照明领域的核心问题之一。商业中白光 LED 主要采用蓝色 LED 芯片激发黄色 YAG 荧光粉的方式来实现白光, 显然提高荧光粉的发光效率将可有效改善白光 LED 的性能指标。而目前研究较多有关 LED 用荧光粉的基质创新和掺杂方面, 对基于局域等离子体共振效应的荧光粉研究尚有待进一步探索。以钛酸四丁酯为前驱体, 采用溶胶-凝胶法制备了以 YAG: Ce³⁺ 荧光粉为载体的表面包覆锐钛矿型纳米二氧化钛的复合荧光材料, 研究了 TiO₂ 纳米颗粒包覆 YAG: Ce³⁺ 荧光粉对粉体发光性能的影响。利用 X-射线衍射仪、扫描电子显微镜、荧光光度计和拉曼光谱仪等测试手段对样品的物相结构和光学特性进行表征分析。研究表明, 在不同温度和不同 TTBO: H₂O 体积比条件下, 制备得到的 TiO₂ 包覆 YAG: Ce³⁺ 荧光粉对粉体的荧光光谱产生了显著的影响, 当 TTBO: H₂O=2: 1 和煅烧温度 600 °C 时, 制备出了发光性能优异的 TiO₂ 包覆 YAG: Ce³⁺ 荧光粉。通过测试分析发现, 样品中 TiO₂ 纳米粒子较好的包覆在 YAG: Ce³⁺ 荧光粉表面, 锐钛矿衍射峰值相对强度较为突出, 锐钛矿具有比金红石更高的光催化活性, 高含量的锐钛矿在激发光激发下更加容易产生光生 e⁻ 和 h⁺; 通过拉曼测试表明, 在 1 264.10 和 1 283.59 cm⁻¹ 处的特征峰得到了增强, 这归因于 TiO₂ 作为一种具有局域等离子体效应的纳米颗粒, 在 633 nm 激发光激发下, 激发光频率与 TiO₂ 包覆 YAG: Ce³⁺ 颗粒界面处的电子吸收峰接近, 其界面处产生了 LSPR 效应; 通过 PL 光谱测试分析表明, 局域表面等离子体共振效应使得制备的 TiO₂ 包覆 YAG: Ce³⁺ 荧光粉的发光强度提高了 21%, 量子效率提高了 5.5%。研究表明, 基于 TiO₂ 的局域表面等离子体效应能有效地提高 YAG: Ce³⁺ 荧光粉的发光效率, 将有望推进和改善白光 LED 在高效、高功率、大流明照明领域的广泛应用。

关键词 纳米二氧化钛; YAG: Ce³⁺ 荧光粉; 局域等离子体共振; 发光效率

中图分类号: TQ174 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2020)10-3081-05

引言

提高白光 LED 的发光效率, 加速替代传统灯具以节约能源, 已成为目前照明领域中的核心问题之一。荧光粉作为 LED 的重要组成部分, 其光学特性将直接影响 WLED 的光效, 寻找改善荧光粉的发光性能的方法, 已成为当前研究者的工作重心。局域表面等离子体共振(LSPR)是指在入射光的激发下, 纳米尺寸结构中电子的集体振荡, 产生共振

(LSPR)需要满足入射光子的频率与纳米材料的表面电子的固有频率相同, 进而材料表面的电子和原子核之间的库仑力使得电子相对于原子核作振荡运动^[1-2]。产生表面等离子体共振时, 表面局域的电场被增强, 纳米材料粒子对光子的吸收能力得到增强, 研究报道, 局域电场的增强与材料表面的粗糙性息息相关^[3], 已有研究者把这种表面增强的光学现象应用在许多领域; Park^[4]等报道了一种高度灵敏的局部表面等离子体共振(LSPR)适体传感器, 利用三磷酸腺苷附在金纳米棒表面的技术, 用于 DNA 序列的检测; Ma^[5]等通过利

收稿日期: 2019-06-04, 修订日期: 2019-10-30

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFB0403100, 2017YFB0403105), 国家自然科学基金项目(61575182, 51832005), 浙江省杰出青年科学基金项目(LR19F050001), 浙江省科技计划项目(2018C37042)资助

作者简介: 冯爱明, 1967 年生, 中国计量大学高级工程师 e-mail: fam@cjlu.edu.cn

* 通讯联系人 e-mail: zhanghong@cjlu.edu.cn; calla@cjlu.edu.cn

用银纳米粒子杰出的 LSPR 效应,成功合成了类金刚石碳膜包覆纳米银粒子;Gezgin^[6]等利用铜纳米粒子的 LSPR 效应,在 Nd:YAG 激光脉冲作用下实现了铜纳米颗粒薄膜的制备。迄今为止,绝大多数等离子体材料仅限于金银铜等金属材料^[7-8],但是这些金属材料中的价电子吸收光子时会发生带隙跃迁而引起损耗。近年来研究者指出,局域等离子体效应不应局限于金属材料,它应该扩展到诸如传统的半导体、导电氧化物,硅化物等非金属材料^[9],作为替代价格昂贵的金银等离子体材料。

二氧化钛是一种非常有应用前景的半导体氧化物,有良好的光电转换、电荷传输、光催化等特性,以及具有非常优异的物理、化学性质和热稳定性^[10-11],基于 TiO₂ 优良的光电特性,使得它成为性能优异的包覆材料,如 Zhang^[12]等利用 TiO₂ 包覆 β-sialon:Eu²⁺ 荧光粉,证明了 TiO₂ 具有 TL-SPR 效应,且这种光学现象使 β-sialon:Eu²⁺ 荧光粉发光强度提高了近 24%,尚缺少对 TiO₂ 纳米颗粒的 LSPR 效应的研究。本文将进一步研究 LSPR 效应对荧光粉的发光性能的影响,通过以钛酸四丁酯为前驱体,采用溶胶-凝胶法制备了以 YAG:Ce³⁺ 荧光粉为载体的表面包覆锐钛矿型纳米二氧化钛的复合荧光材料,借助物相分析、形貌分析、拉曼光谱分析和荧光光谱分析对 TiO₂ 包覆对 YAG:Ce³⁺ 荧光粉进行了系统的研究,并分析探讨其 LSPR 现象的产生机理及影响。

1 实验部分

1.1 锐钛矿型 TiO₂ 制备

以钛酸四丁酯(AR, TTBO),二乙醇胺(AR, DEA),乙醇(AR)为原料,采用溶胶-凝胶法制备 TiO₂ 纳米微粒。首先将 2 mL 钛酸四丁酯和 2 mL 二乙醇胺加入到 40 mL 乙醇(AR)中,磁力搅拌 1 h 形成 TiO₂ 前驱体溶液,其次将前驱体溶液超声磁力搅拌 30 min,再根据 TTBO:H₂O 的体积比,将一定量的 H₂O 滴入制备的悬浮液中,然后磁力搅拌 1 h,再将实验样品置于 60 °C 下干燥 8 h 后,取出干燥后的样品置于马弗炉中以一定的温度煅烧 3 h,待样品冷却后取出研磨,得到锐钛矿型 TiO₂ 粉末。

1.2 TiO₂ 包覆 YAG:Ce³⁺ 荧光粉

以 Y₂O₃(AR),Al₂O₃(AR),CeO₂(AR)为原料,在 H₂/N₂(5%/95%)的气氛下,采用高温固相法在 1 500 °C 烧结并保温 3 h,制备出 YAG:Ce³⁺ 荧光粉,再采用溶胶-凝胶法进行 YAG:Ce³⁺ 荧光粉表面包覆 TiO₂ 实验。图 1 为 TiO₂ 包覆 YAG:Ce³⁺ 荧光粉的实验流程图,具体实验步骤如下:首先将 2 mL 钛酸四丁酯和 2 mL 二乙醇胺加入到 40 mL 乙醇中,磁力搅拌 1 h 形成 TiO₂ 前驱体溶液;接着将 YAG:Ce³⁺ 荧光粉缓慢地加入 TiO₂ 前驱体溶液中,超声磁力搅拌 30 min 制成悬浮液,再根据 TTBO:H₂O 的体积比(文中 TTBO:H₂O 的比例均为体积比),将一定量的去离子水滴入制备的悬浮液中,持续磁力搅拌 1 h,得到表面包覆 TiO₂ 前驱体的样品,再进行高纯度乙醇洗涤、离心交替循环数次。将醇洗后的样品于 60 °C 下干燥 8 h,再将干燥后的样品

置于马弗炉中以一定的温度煅烧 3 h,待样品冷却后取出研磨,最终得到 TiO₂ 包覆 YAG:Ce³⁺ 的复合荧光材料。

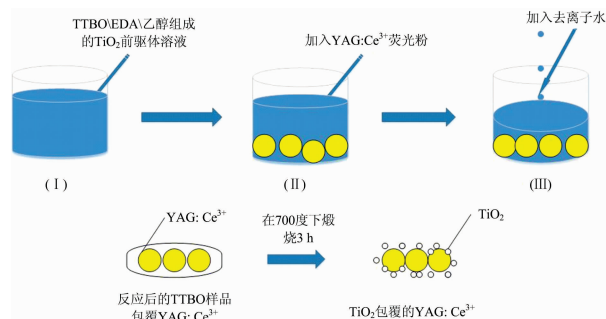


图 1 TiO₂ 包覆 YAG:Ce³⁺ 荧光粉的实验流程图

Fig. 1 Schematics of coating TiO₂ on surface of YAG:Ce³⁺ phosphor

1.3 分析表征

利用德国 Bruker D2 PHASER 型 X-射线衍射仪(铜靶 K_α 线,λ=0.154 06 nm,步长 0.02°,扫描范围 10°~80°,电压和电流分别为 30 kV 和 10 mA)对样品的晶体结构和物相进行分析;利用日本 HATACHI 公司 SU8010 型冷场发射扫描电子显微镜(FE-SEM)对样品进行形貌表征;利用美国 HORIBA JobinYvon Fluorolog 荧光光度计和 HORIBA LabRAM HR Evolution 拉曼光谱仪分别对样品进行发光光谱和拉曼光谱分析。所有测试均在室温下完成。

2 结果与讨论

2.1 TiO₂ 物相分析

TiO₂ 的晶型结构取决于 Ti—O 八面体的排列,根据这种排列主要分为锐钛矿型(四方,空间群:D_{4h}19)和金红石型(四方,空间群:D_{4h}14)两种常见晶型^[13]。通过改变制备 TiO₂ 粉末的反应温度来控制合成的 TiO₂ 相,研究了 TiO₂ 的不同相组分包覆 YAG:Ce³⁺ 荧光粉时对粉体光谱特性产生的影响。图 2 为反应温度在 500~800 °C 下制备的 TiO₂ 粉末的 XRD 图谱。在 500 °C 时,仅发现存在锐钛矿(101)衍射峰;而在 600 °C 时,出现了金红石(110)衍射峰,但锐钛矿(101)衍射峰相对强度仍较为突出,金红石(110)衍射峰的相对强度非常弱;当将温度升高至 700 °C 时,锐钛矿(101)峰的相对强度急剧下降,而金红石(110)峰的相对强度急剧增强;进一步将温度升至 800 °C 时,几乎没有发现锐钛矿(101)衍射峰,金红石(110)衍射峰的相对强度进一步得到了增强。为了定量分析 TiO₂ 相组分随合成温度的变化,可在图 3 中看到锐钛矿质量分数随温度的变化图,其计算方式基于下式所示^[14]

$$f_A = \frac{1}{1 + 1.27 \frac{I_R}{I_A}} \times 100\% \quad (1)$$

其中 f_A 是锐钛矿的质量分数, I_R 和 I_A 分别是金红石(110)和锐钛矿(101)衍射峰的积分强度。当随着温度从 500 °C 升高到 800 °C 时,锐钛矿的重量分数从 100% 降低到 2%,表明随着温度的升高,金红石成分增加,这意味着 TiO₂ 晶型发

生从锐钛矿到金红石的相变。

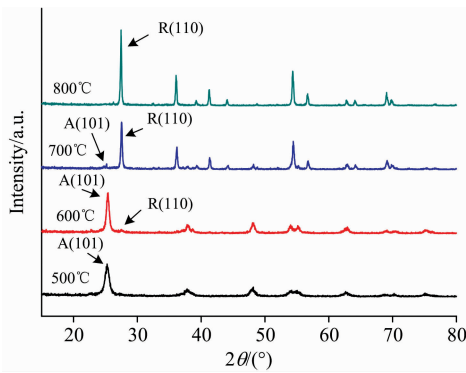


图 2 不同合成温度条件下锐钛矿(A)和金红石(R)型 TiO₂ 的 XRD 图

Fig. 2 X-ray diffraction patterns of anatase and rutile-TiO₂ synthesized at different temperatures

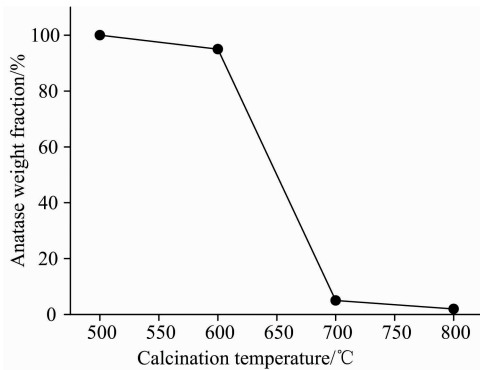


图 3 不同合成温度条件下锐钛矿型 TiO₂ 生成量的变化图

Fig. 3 Formation amount of anatase and rutile-TiO₂ synthesized at different temperatures

2.2 TiO₂ 及 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的形貌分析

TiO₂ 纳米颗粒的形貌会随着合成温度的改变而发生演变,如图 4 所示,分别为合成温度在 500~800 °C 下 TiO₂ 纳米颗粒的微观结构形貌图。当煅烧温度从 500 °C 升高到 800

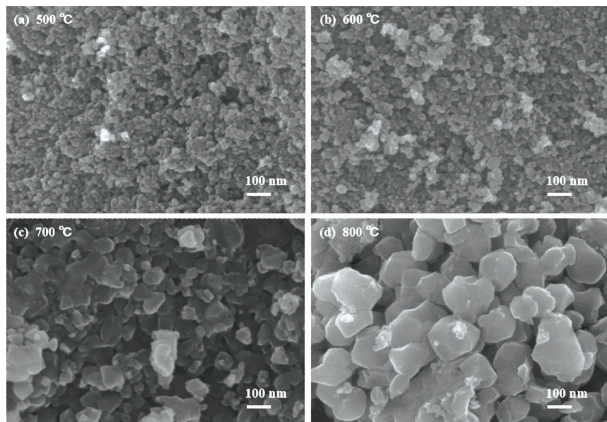


图 4 不同合成温度条件下 TiO₂ 颗粒的 SEM 图

Fig. 4 SEM images of TiO₂ nano-particles at different temperatures

°C, TiO₂ 纳米颗粒形态从球形 (~15 nm) 演变为多边形 (~120 nm), 表明随着合成温度的升高, TiO₂ 纳米粒子会出现生长, 导致 TiO₂ 发生了从锐钛矿到金红石的相变, 与图 3 中 XRD 衍射结果完全相符。

图 5 为 YAG : Ce³⁺ 样品(a)和最佳度条件下 TiO₂ 包覆的 YAG : Ce³⁺ 样品的扫描电子显微镜图。通过微观 SEM 图对比可以发现, 经过 TiO₂ 包覆过程处理的样品, TiO₂ 紧密的包覆在 YAG : Ce³⁺ 颗粒的表面, 是由于 TiO₂ 表面末端氧原子的未配对电子与 YAG : Ce³⁺ 表面上硅原子的未配对电子配对成键, 如图 5(b)所示, 在经由乙醇洗涤后 TiO₂ 颗粒仍较好地吸附在荧光粉表面。

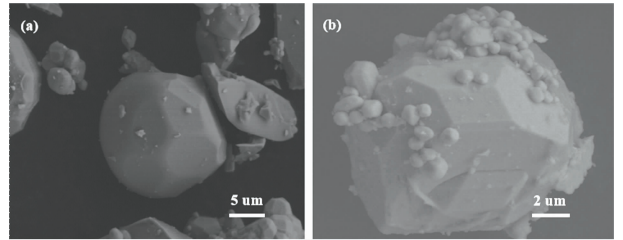


图 5 包覆前后荧光粉样品的 SEM 图

(a): YAG : Ce³⁺; (b): TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺

Fig. 5 SEM images of the samples of YAG : Ce³⁺ and YAG : Ce³⁺ coated with TiO₂

2.3 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的拉曼光谱分析

图 6 为锐钛矿型 TiO₂、TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 及 YAG : Ce³⁺ 在 633 nm 激光激发下的室温拉曼光谱图。通过拉曼光谱的测试, 对 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的拉曼增强局域等离子体共振增强作用机理和晶体组分的变化进行了探讨。由图可以看出, TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的拉曼光谱既有锐钛矿型 TiO₂ 在 144.10 cm⁻¹ 处的特征峰, 也有 YAG : Ce³⁺ 荧光粉在 1 264.10 和 1 283.59 cm⁻¹ 处的特征峰, 表明 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉并没有改变 YAG : Ce³⁺ 的晶体结构。相对于 YAG : Ce³⁺ 而言, TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 在 1 264.10 和 1 283.59 cm⁻¹ 处的特征峰得到了增强, 这归因于 TiO₂ 作为一种具有局域等离子体效应的纳

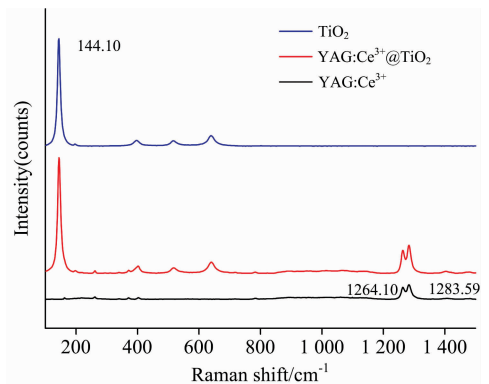


图 6 锐钛矿型 TiO₂、YAG : Ce³⁺ 荧光粉和 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的拉曼光谱图

Fig. 6 Raman spectrograms of anatase TiO₂, YAG : Ce³⁺ and YAG : Ce³⁺ coated with TiO₂

米颗粒^[11], 在 633 nm 激发光激发下, 激发光频率与 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 颗粒界面处的电子吸收峰接近, 界面处产生了 LSPR 效应^[15], 从而导致 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉复合材料的拉曼效应增强。

2.4 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的荧光光谱特性分析

图 7 为 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的荧光光谱图, 研究了不同含量的 TiO₂ (TTBO : H₂O = 2 : 1, 1 : 1, 1 : 2 和 1 : 3) 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的发射光谱图。由图 8 可以看出, 当在 460 nm 激发光波长激发下, TTBO : H₂O = 1 : 1 和 2 : 1 的体积比下制备的 TiO₂ 包覆层有助于提高 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉复合材料的发光强度。与没有任何包覆处理过的荧光粉样品进行比较: 通过与未包覆的样品进行比较, 在 TTBO : H₂O = 1 : 2 和 1 : 3 时, 制备的 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 样品后荧光粉样品的发光强度分别减少了 23% 和 26%; 在 TTBO : H₂O = 1 : 1 和 2 : 1 时, 其样品的发射强度分别提高了 13% 和 21%, 量子效率提高了 5.5%。

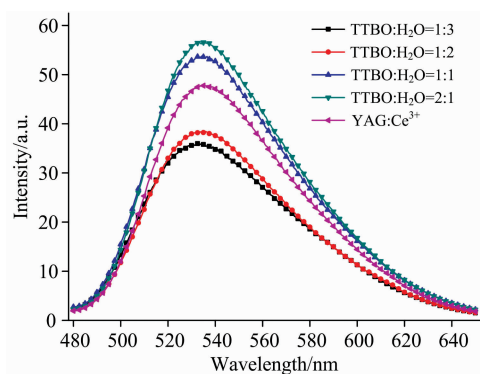


图 7 不同 TTBO : H₂O 含量条件下的 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的发射光谱图

Fig. 7 Emission spectrograms of YAG : Ce³⁺ coated with TiO₂ at different contents of TTBO/H₂O

如图 8 所示, 在 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 样品的最佳合成温度为 600 °C 和 TTBO : H₂O = 2 : 1 时, TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 样品呈现出最优 PL 值, 温度是影响 TiO₂ 包覆 YAG 荧光粉合成的重要因素。如图 3 所示, 由于在 600 °C 下, 制备的 TiO₂ 包覆层中由 ~95% 质量分数的锐钛矿组成, 比在 700 °C (~5%) 和 800 °C (~2%) 下制备包覆层中锐钛矿的含量高约 20 倍, 而锐钛矿具有比金红石更高的光催化活性^[16], 高含量的锐钛矿在激发光激发下更加容易产生光生 e⁻ 和 h⁺^[17], 这有利于将 Ti⁴⁺ 还原为 Ti³⁺, 以形成非化学计量 TiO₂ 纳米粒子, 进而产生 LSPR 效应。有研究者指出, 粒子电磁场的强弱不仅取决于单个粒子大小和形态还会受到颗粒

表面粗糙性的影响^[18], 而磁场的强弱能体现出等离子体共振的强弱, 金属纳米球能有效地产生等离子体效应^[19]。因此, 可以看出在 600 °C 下制备的纳米球形 TiO₂ 锐钛矿颗粒 [图 4(b)] 能有效地产生 LSPR 效应。另外, 在 500 °C 制备的 TiO₂ 包覆层具有更高的锐钛矿含量 (图 3) 和更小的球形粒径 (图 4a), 与在 600 °C 下获得的 TiO₂ 样品相比, 500 °C 合成的 TiO₂ 纳米颗粒的结晶度较低 (图 2), 且粒径较小容易在粉体表面形成致密的厚层, 从而造成了荧光粉发光强度的猝灭 (图 8)。

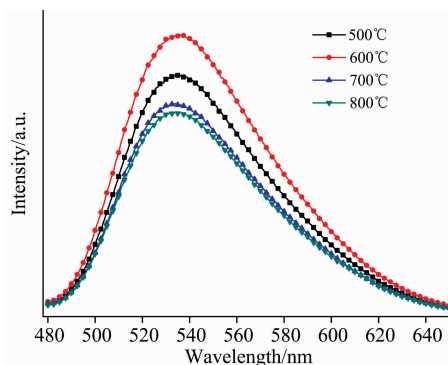


图 8 不同合成温度下的 TiO₂ 包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的发射光谱图

Fig. 8 Emission spectrograms of YAG : Ce³⁺ coated with TiO₂ at different temperatures

3 结 论

采用溶胶-凝胶法在不同钛酸四丁酯与去离子水比、不同温度条件下制备了 TiO₂ 纳米颗粒包覆 YAG : Ce³⁺ 荧光粉, 并用 XRD、SEM、PL/拉曼光谱对其进行晶相、形貌和发光性能分析。研究表明, 当 TTBO 与去离子水体积比是 TTBO : H₂O = 2 : 1, 合成温度为 600 °C 时, 包覆后的荧光粉均有较好的 TiO₂ 和 YAG 晶相, 优化合成条件下的样品可有效地被蓝光激发, 并发出优异的黄光光谱; 与未进行包覆的 YAG : Ce³⁺ 荧光粉相比, 采用 460 nm 波长的激发光激发, TiO₂ 纳米颗粒包覆的 YAG : Ce³⁺ 荧光粉的发射强度提高了 21%, 量子效率提高了 5.5%, 在 1 264.10 和 1 283.59 cm⁻¹ 处的拉曼光谱特征峰得到了增强, 归功于 TiO₂ 包覆层与荧光粉表面之间界面处的 LSPR 效应, 在 600 °C 条件下制备出 TiO₂ 包覆 YAG 荧光粉样品中较高的锐钛矿含量和 TiO₂ 球形颗粒形状可以有效加强 LSPR 效应而改善荧光粉的发光特性。本研究为 TiO₂ 在荧光粉中的发光增强的深入研究奠定了基础, 有望推进和实现 YAG : Ce³⁺ 荧光粉在高效、高功率、大流明照明领域的照明前景。

References

- [1] Agrawal A, Singh A, Yazdi S, et al. Nano Letters, 2017, 17(4): 2611.
- [2] Naiki H, Masuo S, Machida S, et al. Journal of Physical Chemistry C, 2011, 115(47): 23299.
- [3] HONG Xin, DU Dan-dan, QIU Zu-rong, et al (洪昕, 杜丹丹, 裴祖荣, 等). Acta Physica Sinica (物理学报), 2007, 56(12): 7219.
- [4] Park J H, Byun J Y, Shim W B, et al Biosensors & Bioelectronics, 2015, 73: 26.

- [5] Ma N Y, Zeng D, Huang Y J, et al. *Materials Science Forum*, 2013, 745: 60.
- [6] Gezgin S Y, Kepceoglu A, Kiliç H Ş. *AIP Conference Proceedings*, 2017, 1815(1): 030020.
- [7] Chu C K, Tu Y C, Hsiao J H, et al. *Nanotechnology*, 2016, 27(11): 115102.
- [8] Xu H, Li H, Xia J, et al. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2011, 3(1): 22.
- [9] Jacob B, Khurgin, et al. *MRS Bulletin*, 2012, 37(8): 768.
- [10] Naik G V, Shalaev V M, Boltasseva A. *Advanced Materials*, 2013, 25(24): 3264.
- [11] McCormick J R, Zhao B, Rykov S A, et al. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2004, 108(45): 17398.
- [12] Zhang C, Uchikoshi T, Xie R J, et al. *Journal of the American Ceramic Society*, 2019, 102(1): 294.
- [13] Zhang J, Chen S, Qian L, et al. *Journal of the American Ceramic Society*, 2015, 97(12): 4005.
- [14] Spurr R A, Myers H. *Analytical Chemistry*, 1957, 29(5): 760.
- [15] Sun G, Khurgin J B. *Physical Review A*, 2012, 85: 063410.
- [16] Méndezmedrano M G, Kowalska E, Lehoux A, et al. *Journal of Physical Chemistry C*, 2016, 120(9): 5143.
- [17] Pei Z, Ding L, Lin H, et al. *Journal of Materials Chemistry A*, 2013, 1(35): 10099.
- [18] Shalaev V M. *Nonlinear Optics of Random Media*. Springer, Berlin, 2000.
- [19] Luo B, Xu Y, Wu S, et al. *Biosensors & Bioelectronics*, 2018, 100: 169.

Significantly Improved Luminescence Properties of YAG Phosphor via Localized Surface Plasmon Resonance of Nanotitania

FENG Ai-ming¹, WANG Fu-qiang¹, ZHANG Hong^{1*}, AN Peng², LI Yang-hui^{1, 3}, WANG Le^{1*}

1. College of Optics and Electronic Science and Technology, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China

2. School of Electronic and Information Engineering, Ningbo University of Technology, Ningbo 315211, China

3. State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China

Abstract White light-emitting diodes (wLEDs) have been considered to be new-generation light sources due to their advantages such as energy-saving, environment-friendly and long lifetime, safety and reliability. Nevertheless, it is the core issue to improve the luminous efficacy of wLED and excavate lighting properties in depth. At present, the commercial way to produce wLEDs are combining a blue-chip with yellow phosphor material as YAG : Ce³⁺, and the luminescence efficiency of white LED can be effectively improved by improving the luminescence efficiency of phosphor. A novel nanocomposite powder of YAG : Ce³⁺ coated with anatase nanotitania particles was prepared by sol-gel method using tetrabutyl titanate as the precursor, and the effect of TiO₂ nano-particles coating on the luminescence properties of YAG : Ce³⁺ phosphors were investigated. The phase structure and optical properties of the samples were characterized by X-ray diffractometer, scanning electron microscope and spectrometer. The results have revealed that TiO₂ coating YAG : Ce³⁺ phosphors prepared at different temperatures and different volume ratios (TTBO : H₂O) have a significant effect on the fluorescence spectrum of the powder, optimizing preparation temperature is 600 °C and TTBO : H₂O = 2 : 1 (in volume ratio). The result of the tests showed that TiO₂ coating layer around the phosphor surface by the SEM observation, the diffraction peak of anatase is relatively strong, and the separation of the photogenerated e⁻/h⁺ pairs can be promoted, leading to increasing quantum efficiency. The Raman spectrum indicated that the energy of localized surface plasmon resonance (LSPR) propagating on the interface at the excitation wavelength of 633 nm, and the intensity of the characteristic peaks at 1 264. 10 and 1 283. 59 cm⁻¹ were increased. The photoluminescence spectrum indicated that luminescence intensity of TiO₂ coating YAG : Ce³⁺ phosphors were improved 21%, the quantum efficiency has been improved 5. 5%, which was by the contribution of the TiO₂ localized surface plasmon resonance effect. This study reveals that the localized plasmon effect based on TiO₂ could effectively improve the luminescence efficiency of YAG : Ce³⁺ phosphor, and the application of YAG : Ce³⁺ phosphor to wLED plays an active role in high efficiency, high power and large lumen condition.

Keywords Nanotitania; YAG : Ce³⁺ phosphor; Localized surface plasmon resonance (LSPR); Luminescence efficiency

* Corresponding authors

(Received Jun. 4, 2019; accepted Oct. 30, 2019)