

(Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺红色荧光粉的化学共沉淀合成与光致发光

杨玉玲¹ 黎学明^{*,1,2} 冯文林³ 李武林² 陶传义²

(¹重庆大学化学化工学院, 重庆 400044)

(²重庆大学光电工程学院, 光电技术及系统教育部重点实验室, 重庆 400044)

(³重庆理工大学应用物理学院, 重庆 400044)

摘要: 使用 NH₄HCO₃-NH₃·H₂O 混合沉淀剂, 采用化学共沉淀法合成(Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺红色荧光粉, 通过 XRD、EDS、荧光光谱和 CIE 色度图研究该荧光粉的晶体结构、成分组成及发光性能。结果表明, 实验按照理论化学计量比成功合成了(Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺红色荧光粉, 该荧光粉为 CaMoO₄ 白钨矿结构; (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺具有⁷F₀→⁵L₆(394 nm) 和⁷F₀→⁵D₂(465 nm) 的强电子吸收, 且在 613 nm 处可发射高强度红光, 其色坐标为(0.666 5, 0.332 9), 明显优于传统的 Y₂O₂S:Eu³⁺红色荧光粉; 此外, 当 Lu 含量为 30mol% 时, 荧光粉发光强度最佳。

关键词: (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺; 化学共沉淀; 发光; 红色荧光粉

中图分类号: O611.4 文献标识码: A 文章编号: 1001-4861(2011)02-0276-05

Co-precipitation Synthesis and Photoluminescence of (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺ Red Phosphors

YANG Yu-Ling¹ LI Xue-Ming^{*,1,2} FENG Wen-Lin³ LI Wu-Lin² TAO Chuan-Yi²

(College of Chemistry and Chemical Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China)

(²The Key Lab for Optoelectronic Technology & System of the Ministry of Education,

College of Optoelectronic Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China)

(³Department of Applied Physics, Chongqing University of Technology, Chongqing 400044, China)

Abstract: Using NH₄HCO₃-NH₃·H₂O as mixed precipitator, (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺ red phosphors were synthesized by co-precipitation method. The phase formation, composition and luminescence properties of (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺ were analyzed by XRD, EDS, PL and CIE. The results show that (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺ red phosphors have been successfully prepared by co-precipitation method according to theoretic ratio, and the synthesized (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺ have scheelite structure with pure phase. The phosphors have strong electron absorbability of⁷F₀→⁵L₆ and⁷F₀→⁵D₂ at 394 nm and 465 nm and can emit red lighting with high intensity. The CIE of (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺ red phosphors is (0.666 5, 0.332 9), which is better than that of traditional Y₂O₂S:Eu³⁺ red phosphors. In addition, when the concentration of Lu is 30mol%, the luminescent intensity of (Ca_{0.55}Lu_{0.3})MoO₄:0.15Eu³⁺ is highest.

Key words: (Ca_{1-x-y}Lu_y)MoO₄:xEu³⁺; co-precipitation; photoluminescence; red phosphors

荧光转换型白光发射二极管(W-LED)具有高效节能、无污染、寿命长等优点, 正逐渐取代传统的白

炽灯、荧光灯, 将成为 21 世纪的主要照明光源^[1-3]。在白光 LED 的实现过程中, 红色荧光粉具有重要作用

收稿日期: 2010-07-27。收修改稿日期: 2010-09-16。

重庆大学 211 工程三期创新人才培养计划建设项目(No.S-09013), 重庆市自然科学基金(No.2005BA4016), 中国博士后基金(No.20100470810) 项目资助。

*通讯联系人。E-mail:xuemingli@cqu.edu.cn; 会员登记号:S06N5027M1006。

用,它不仅可克服黄色荧光粉 YAG: Ce^{3+} 与蓝光 LED 形成的白光因缺少红光成分显色性差的缺点,也是三基色荧光粉的重要组成。但是,目前广泛应用于 W-LED 的红色荧光粉(如 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}^{3+}$)发光效率低且化学性质不稳定^[4],严重影响 W-LED 的应用性能。因此,研究出一种在近紫外光和蓝光激发下具有高光输出率、半峰宽小且低光衰的红色荧光粉,对于改善 W-LED 的性能十分重要。

大量研究表明,化学性质稳定的白钨矿钼酸盐体系是一种性能优异的基质材料^[5-8]。 $\text{Hu}^{[9]}$ 等采用高温固相法制备 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉。研究表明,该荧光粉在近紫外(394 nm)和蓝光(464 nm)激发下可发射高纯度红光,发光强度为传统红色荧光粉 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}^{3+}$ 的 5 倍。与黄、绿、蓝色荧光粉相比,该 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉的发光效率仍然较低。元素 Y、La、Gd 和 Lu 处于全充满、半充满或全空的稳定状态,属于光学惰性元素,因此特别适宜用作基质材料。高飞^[10]通过对 $\text{Li}_3\text{Ba}_2\text{Ln}_{3-x}\text{Eu}_x(\text{MoO}_4)_8$ (Ln=La, Gd, Y)的研究表明,该红色荧光粉不仅具有很强的基质吸收带,并且在 616 nm 处有强红光发射;Haque^[11]等也发现,光学惰性元素 Y 的引入,使 $\text{NaCaY}(\text{MoO}_4)_3:\text{Eu}$ 的发光强度为 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}, \text{Na}$ 的 1.6 倍。但是,目前荧光粉主要采用传统高温固相法制备,合成的产品颗粒较大需进行后处理,严重影响荧光粉的发光性能。而化学共沉淀法由于操作简单、合成的产品组分均匀且颗粒较小等优点而广泛应用于无机材料的制备^[12]。因此,实验拟以 $\text{NH}_4\text{HCO}_3\text{-NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 为沉淀剂,采用化学共沉淀法合成($\text{Ca}_{1-x-y}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot $x\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉,并讨论 Lu 的引入对晶体结构及发光性能的影响。

1 实验部分

1.1 ($\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot 0.15Eu $^{3+}$ 的合成

按($\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot 0.15Eu $^{3+}$ 化学式物质的量比分别称取 Eu_2O_3 (99.99%)、 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (A.R.)、 $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (A.R.),用适量稀硝酸($\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}=1:1, V/V$)加热溶解 Eu_2O_3 ,用去离子水分别溶解 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 和 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$,将上述溶液混合均匀即为母液。配置一定浓度比的 $\text{NH}_4\text{HCO}_3\text{-NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 混合沉淀剂。在不断剧烈搅拌下,使用蠕动泵(流量 $5 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$)将母液滴加到沉淀剂中,结束后继续搅拌 30 min,停止搅拌,陈化、抽滤后在 110~120 ℃干燥 12 h 即得前驱体。将前驱体在

500 ℃预烧,900 ℃煅烧后随炉冷却,得到分散均匀的荧光粉样品。

1.2 实验表征

使用 XRD-6000 型 X 射线衍射仪分析荧光粉的晶体结构,工作电压和电流分别为 40 kV 和 30 mA,扫描速度 $8^\circ\cdot\text{min}^{-1}$,步长 0.02° ,扫描范围 $10^\circ\sim 70^\circ$;使用 INCA-350 型 X 射线能谱仪分析荧光粉的化学元素组成;利用 RF-5301 型分子荧光光度计测试荧光粉的激发与发射光谱,光源为氘灯,激发和发射狭缝均为 3 nm;使用 PMS-50(增强型)紫外-可见-近红外光谱分析系统测定荧光粉的色度学参数,仪器扫描范围 300~800 nm,扫描间隔 5 nm。

2 结果与讨论

2.1 Lu 掺杂对晶体结构的影响

图 1 为使用混合沉淀剂制备的($\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot 0.15Eu $^{3+}$ 荧光粉的 XRD 图,煅烧时间 4 h。由图可知,当元素 Lu 的掺杂量较少,即低于 50 mol% 时,样品的所有衍射峰均与 CaMoO_4 标准卡 JCPDS 29-0351 一致,为单一的四方晶系白钨矿结构,无任何杂质峰出现,表明适量 Lu 元素的引入不会破坏荧光粉的晶体结构。但当 Lu 元素掺杂量超过 50 mol% 后,样品 XRD 图出现少量杂峰,且衍射峰强度明显下降。在($\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot 0.15Eu $^{3+}$ 体系中,Eu $^{3+}$ 和 Lu $^{3+}$ 分别取代 CaMoO_4 晶体中的 Ca^{2+} 而非 Mo^{6+} 。这是因为 Eu $^{3+}$ (0.094 7 nm) 和 Lu $^{3+}$ (0.084 8 nm) 与 Ca^{2+} (0.099 nm) 的离子半径相差较小,而与 Mo^{6+} (0.065 nm) 相差太大,如果取代 Mo^{6+} 格位会使晶体体积发生较大的变化,从而将改变样品的晶体结构,这与 XRD 的实验结果不一致。但是,若 Lu 元素的掺杂量过多,大

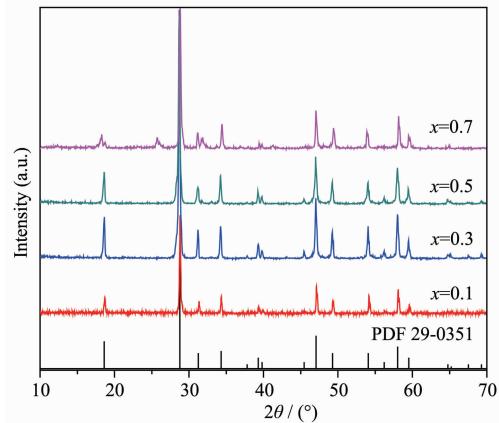


图 1 ($\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot 0.15Eu $^{3+}$ 的 XRD 图

Fig.1 XRD patterns of ($\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x\text{MoO}_4$) \cdot 0.15Eu $^{3+}$ phosphors

量 Ca^{2+} 的取代导致晶体结构畸变程度加大^[13],甚至破坏原有的钼酸钙白钨矿结构,因而在 XRD 图中出现了少量的杂峰。

在本实验中, Ca^{2+} 存在两种取代方式: 2M^{3+} ($\text{M}=\text{Eu}$ 或 Lu) 取代 3Ca^{2+} 后,在晶格中形成一个 Ca^{2+} 空位,或者 1M^{3+} 取代 1Ca^{2+} 后产生 1 个剩余电荷。虽然大量研究表明^[14-15],使用碱金属离子 M^+ ($\text{M}=\text{Li}, \text{Na}, \text{K}$) 等电荷补偿剂可以有效改善在取代过程中的电荷不平衡情况。但王贵喜等^[16]的研究表明,本实验存在的两种取代方式导致的缺陷有助于加强该荧光粉的发光强度并进一步改善其性能。

2.2 $(\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x)\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的元素分析

图 2 给出 $(\text{Ca}_{0.45}\text{Lu}_{0.4})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉的 EDS 谱图。由图可知, $(\text{Ca}_{0.45}\text{Lu}_{0.4})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 中含有 $\text{Ca}、\text{O}、\text{Mo}、\text{Eu}$ 和 Lu 元素。通过 EDS 表面组成分析可知, $(\text{Ca}_{0.45}\text{Lu}_{0.4})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 中 $\text{Ca}、\text{O}、\text{Mo}、\text{Eu}$ 和 Lu 的重量百分比分别为 6.90%、23.11%、35.63%、9.11% 和 25.25%,与理论比 6.66%、23.64%、35.43%、8.4% 和 25.85% 相接近,表明实验通过化学共沉淀法且按理论百分比成功合成了 $(\text{Ca}_{0.45}\text{Lu}_{0.4})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉。

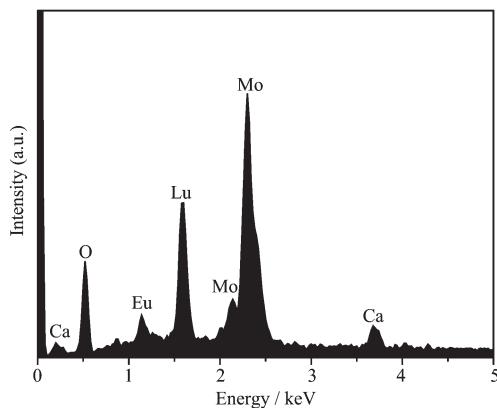


图 2 $(\text{Ca}_{0.45}\text{Lu}_{0.4})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的 EDS 谱图

Fig.2 EDS of $(\text{Ca}_{0.45}\text{Lu}_{0.4})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ phosphors

2.3 $(\text{Ca}_{0.85-x}\text{Lu}_x)\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 发光性能

图 3 为 900 ℃下煅烧 4 h 的 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 和 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的激发光谱图,监测波长为 613 nm。由图可知,Lu 元素的引入对荧光粉的激发光谱峰的位置和形状没有影响, $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 和 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的激发光谱均有一个 300~350 nm 宽电荷迁移带,为电荷密度从配体 O^{2-} 的 $2p$ 轨道向金属离子 Mo^{6+} 和 Eu^{3+} 的 $4d$ 和 $4f$ 分子轨道重新分配的结果^[17]。该电荷迁移带很弱,这是因为 $\text{Eu}^{3+}、\text{Lu}^{3+}$ 取代了晶体中部分 Ca^{2+} 的格位,从而

使晶体结构产生微小的缺陷所致^[16],但该缺陷可使 MoO_4^{2-} 吸收的能量更有效传递给 Eu^{3+} ,明显增强了 465 nm 的 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_2$ 电子跃迁。此外,位于 362、383、394、425、465 和 475 nm 的窄峰均为 Eu^{3+} 的 $4f^7$ 基态向激发态跃迁,分别对应于 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_4$ 、 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{L}_7$ 、 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{L}_6$ 、 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_3$ 、 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_2$ 和 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_1$ 跃迁。其中, ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{L}_6$ 和 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_2$ 吸收远强于其它峰,这有利于提高红色荧光粉与紫外光和蓝光 LED 芯片的匹配性,从而改善商业 W-LED 的显色性能。

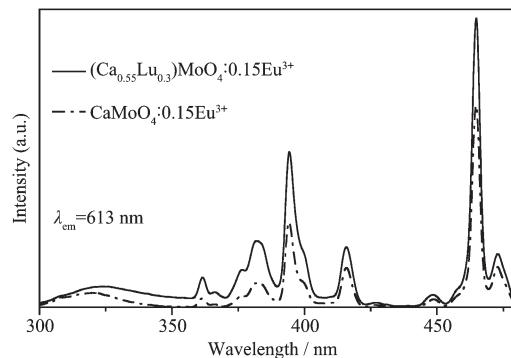


图 3 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 和 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的激发光谱图

Fig.3 Excitation spectra of $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ and $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ phosphors

图 4 为 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 和 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的发射光谱,激发波长为 394 nm。由图可知, $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 和 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的峰形和峰位置均相同,主要由 614 nm 的 ${}^5\text{D}_0 \rightarrow {}^7\text{F}_2$ 电偶极跃迁和 590 nm 的 ${}^5\text{D}_0 \rightarrow {}^7\text{F}_1$ 磁偶极跃迁组成。但 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉的发光强度明显高于 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉。这是因为 Eu^{3+} 的 $f-f$ 跃迁是 f^6 组态内的跃迁,始态和终态的宇称相同,因而电偶极跃迁是禁阻的。但在 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 晶格中,Lu³⁺ 的引入使 Eu^{3+} 周围环境的对称中心移动,宇称相反的 $5d$ 和 $5g$ 组态与 $4f$ 组态混合,从而使宇称禁阻能更好的解除而产生 ${}^5\text{D}_0 \rightarrow {}^7\text{F}_2$ 的电偶极跃迁^[18],因而发射高强度红光。此外,Hu^[19] 通过对比 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 和传统红色荧光粉 $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+}$ 的荧光光谱发现,在 394 和 464 nm 激发下, $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+}$ 的发射光谱均为一个 600~700 nm 宽带,最大峰位于 650 nm 处,且其发光强度分别为 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 发光强度的 20% 和 15%。因此, $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉的发光性能不仅明显优于传统的红色荧光粉,还改善了 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉的发光强度。

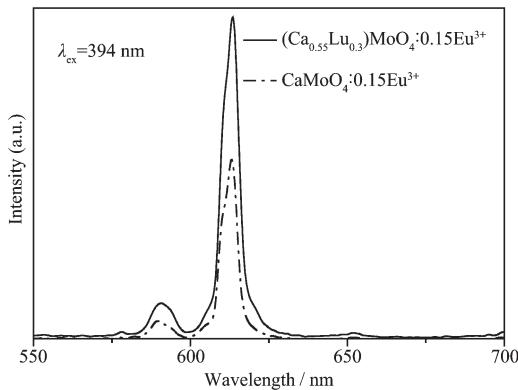
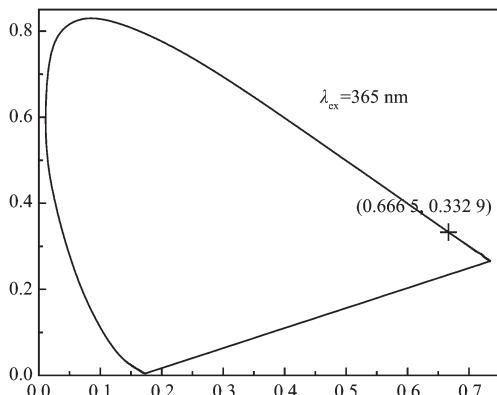


图 4 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 和 $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的发射光谱

Fig.4 Emission spectra of $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ and $\text{CaMoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ phosphors

发光色度是表征发光材料特性的一个基本参数^[19-20]。图 5 为 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 在近紫外光激发下的 CIE 色度图。测量结果表明,样品的色坐标值为(0.666 5, 0.332 9),与传统的红色荧光粉 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}^{3+}$ (0.631, 0.350)相比, $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 荧光粉的色坐标更接近规定的红色色度坐标(0.67, 0.33),具有高纯度的红光。因此,该红色荧光粉有可能取代传统商业红色荧光粉并应用于 W-LED 中,从而改善 W-LED 的显色性和使用性能。



“+”代表 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 荧光粉的 CIE 位置

图 5 $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的 CIE 色度图

Fig.5 CIE of $(\text{Ca}_{0.55}\text{Lu}_{0.3})\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ phosphors

2.4 Lu 掺杂量对发光性能的影响

图 6 给出在 394 nm 激发的不同 Lu 掺杂量对荧光粉发光性能的影响图。由图可知,随 Lu 掺杂量的增加,荧光粉的发光强度明显增强,但当 Lu 含量达到 30mol% 后,掺杂离子的再增加使发光强度下降。在 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 晶体中,Lu³⁺的引入主要取代 Ca^{2+} 格

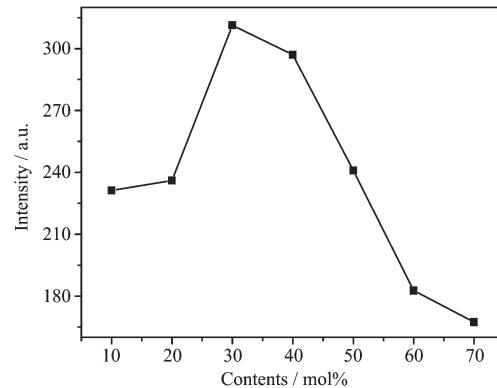


图 6 Lu 掺杂量对 $(\text{Ca}_{1-x-y}\text{Lu}_y)\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ 的发光强度的影响

Fig.6 Effect of concentration of Lu on the luminescent intensity of $(\text{Ca}_{1-x-y}\text{Lu}_y)\text{MoO}_4:0.15\text{Eu}^{3+}$ phosphors

位,少量掺杂可一定程度上破坏晶体完整性并在杂质格点上造成电荷失衡,使 Eu^{3+} 受周围晶格产生的晶体场作用更大,因此宇称选律定则放宽,发光强度更高。但若掺杂量过高,会改变 CaMoO_4 的白钨矿晶体结构,引起发光性质突变^[21],因而发光强度下降。

3 结 论

采用 $\text{NH}_4\text{HCO}_3-\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 混合沉淀剂,通过化学共沉淀法且按理论百分比成功合成了 $(\text{Ca}_{1-x-y}\text{Lu}_y)\text{MoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉。Lu 的引入不会破坏钼酸钙的白钨矿晶相结构,却可有效提高 ${}^7F_0 \rightarrow {}^5L_6$ (394 nm) 和 ${}^7F_0 \rightarrow {}^5D_2$ (465 nm) 的电子吸收效率,增加与紫外光和蓝光 LED 芯片的匹配性。与 $\text{CaMoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 红色荧光粉相比, $(\text{Ca}_{1-x-y}\text{Lu}_y)\text{MoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 的发光强度明显提高,其色坐标为(0.666 5, 0.332 9),优于传统的红色荧光粉 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}^{3+}$ (0.631, 0.350)。当 Lu 的掺杂量为 30mol% 时,荧光粉发光强度最佳。因此,使用化学共沉淀法制备的 $(\text{Ca}_{1-x-y}\text{Lu}_y)\text{MoO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 荧光粉,有望取代传统的红色荧光粉并应用于白光 LED 中,从而改善 W-LED 的使用性能。

参考文献:

- [1] Dong T T, Li Z H, Ding Z G, et al. *Mater. Res. Bull.*, **2008**, *43*(7):1694-1701
- [2] GAO Fei(高飞), LIANG Li-Fang(梁利芳), GUO Chong-Feng (郭崇峰). *Chin. Rare Earths.(Xitu Xuebao)*, **2010**, *31*(1):7-10
- [3] Yang Y L, Li X M, Feng W L, et al. *J. Alloys Compd.*, **2010**, *505*(1):239-242
- [4] Wang Y G, Ma J F, Tao J T, et al. *Ceram. Int.*, **2007**, *133*(4):

- 693-695
- [5] Nassau K, Levinstein H J, Loiaconon G M. *J. Phys. Chem.*, **1965**,**26**(12):1805-1806
- [6] Hwang K S, Seung H, Kim J T. *Ceram. Int.*, **2009**,**35**(6):2517-2519
- [7] ZHOU Li-Ya(周立亚), WANG Lei(王雷), WEI Jian-She(魏建设), et al. *Chin. Chem. Res. Appl.(Huaxue Yanjiu Yu Yingyong)*, **2008**,**20**(8):952-956
- [8] Chiu C H, Wang M F, Lee C S, et al. *J. Solid State Chem.*, **2007**,**180**(2):619-627
- [9] Hu Y S, Zhuang W D, Ye H Q, et al. *J. Alloys Compd.*, **2005**,**390**(1/2):226-229
- [10] GAO Fei(高飞), LIANG Li-Fang(梁利芳), GUO Chong-Feng(郭崇峰). *Chin. J. Lumin.(Faguang Xuebao)*, **2009**,**30**(5):611-615
- [11] Haque M M, Lee H L, Kim D K. *J. Alloys Compd.*, **2009**,**481**(1/2):792-796
- [12] Yang P, Yao G Q, Lin J H. *Inorg. Chem. Commun.*, **2004**,**7**(3):389-391
- [13] XIE An(谢安), YUAN Xi-Ming(袁曦明), WANG Juan-Juan(王娟娟), et al. *Chin. Sci. E(Zhongguo Kexue)*, **2009**,**39**(6):1063-1068
- [14] Liu J, Lian H Z, Shi C S. *Opt. Mater.*, **2007**,**29**(12):1591-1594
- [15] Li X, Yang Z P, Guan L, et al. *J. Alloys Compd.*, **2009**,**478**(1/2):684-686
- [16] WANG Gui-Xi(王贵喜), BO Su-Ling(薄素玲), QI Xia(齐霞), et al. *Chinese J. Inorg. Chem.(Wuji Huaxue Xuebao)*, **2009**,**25**(2):350-353
- [17] Zhang Z J, Chen H H, Yang X X, et al. *Mater. Sci. Eng., B*, **2007**,**145**(1/2/3):34-40
- [18] Yan B, Wu J H. *Mater. Chem. Phys.*, **2009**,**116**:67-71
- [19] LI Xue-Ming(黎学明), KONG Ling-Feng(孔令峰), LI Wu-Lin(李武林), et al. *Chinese J. Inorg. Chem.(Wuji Huaxue Xuebao)*, **2009**,**25**(5):865-868
- [20] ZHANG Mei(张梅), HE Xin(何鑫), DING Wei-Jia(丁唯嘉), et al. *Prog. Chem.(Huaxue Jinzhan)*, **2010**,**22**(2/3):376-382
- [21] YAO Guang-Qing(姚光庆), FENG Yan-E(冯艳娥), DUAN Jie-Fei(段洁菲), et al. *Acta Phys.-Chim. Sin.(Wuli Huaxue Xuebao)*, **2003**,**19**(3):226-229