

稀土掺杂 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 荧光粉的发光特性及能量传递

田燕娜 杜 英 沈巧巧 焦 艳 马 婧 柏朝晖*

(长春理工大学材料科学与工程学院, 长春 130022)

摘要: 采用高温固相法制备了 Ce、Sm 共掺 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 荧光粉。通过 X 射线衍射分析、荧光光谱分析研究了样品的结构、发光特性, 并通过理论计算研究了能量传递效率、能量传递的临界距离以及能量传递方式。X 射线衍射分析表明所制备的荧光粉具有单一的石榴石结构; 荧光光谱分析表明, 在 464 nm 蓝光激发下, Sm^{3+} 的引入可增加 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}, \text{Sm}$ 发射光谱中红光成分, 并且随着 Sm^{3+} 浓度的增加, Ce^{3+} 发光强度逐渐减弱。计算出 Ce^{3+} 、 Sm^{3+} 之间的能量传递效率高达 77.42%, 确定了 Ce^{3+} 、 Sm^{3+} 之间的能量传递机制为偶极-偶极相互作用。

关键词: $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$; Ce^{3+} ; Sm^{3+} ; 发光; 能量传递

中图分类号: TQ174

文献标识码: A

文章编号: 1001-4861(2016)10-1771-06

DOI: 10.11862/CJIC.2016.224

Luminescence and Energy Transfer of Rare Earth Doped $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ Phosphor

TIAN Yan-Na DU Ying SHEN Qiao-Qiao JIAO Yan MA Jing BAI Zhao-Hui*

(Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China)

Abstract: $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}, \text{Sm}$ fluorescent phosphors were synthesized by high temperature solid-state method. The structures and luminescence properties of samples was analyzed by X-ray diffraction and fluorescence spectrum analysis. Additionally, the energy transfer efficiency, the transfer critical distance and the way of energy transfer were calculated. X-ray diffraction analysis shows that the synthesized phosphors have single garnet structure; the fluorescence spectrum analysis shows that the introduction of Sm^{3+} can increase the red component of the emission spectrum of $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}, \text{Sm}$ fluorescent phosphors under the excitation wavelength of 464 nm blue light and with the increase of Sm^{3+} concentration, the luminescence intensity of Ce^{3+} gradually decreased. Besides, the energy transfer efficiency between Sm^{3+} and Ce^{3+} as high as 77.42% was calculated. The transfer mechanism of Ce^{3+} and Sm^{3+} is determined to be dipole-dipole interaction.

Keywords: $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$; Ce^{3+} ; Sm^{3+} ; luminescence; energy transfer

0 引 言

近年来, 白光发光二极管(LED)凭借其无污染、体积小、功耗低、寿命长、响应速度快和可靠性高等优点, 在固体照明和显示器背光源等方面显示出了巨大的市场潜力和应用前景^[1-2]。目前白光 LED 的主要实现方式是荧光转换型, 即用蓝光 LED 芯片与可

被蓝光激发的荧光粉组合而成^[3]。日本日亚化学公司研发的 YAG:Ce 黄色荧光粉是目前商业应用最广泛的白光 LED 发光荧光粉^[4]。由于 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 黄色荧光粉热猝灭性能较差, 芯片功耗发热会使紧贴芯片的荧光粉温度升高, 导致荧光粉性能恶化, 发光效率降低^[5]不能满足普通照明对于暖白光的需求。因此, 研制具有更稳定物理化学性能以及优良热性

收稿日期: 2016-04-29。收修改稿日期: 2016-09-10。

国家自然科学基金(No.61307118)、吉林省科技发展计划项目(No.20130102016JC, 20130522176JH)和大学生创新计划项目(No.2015S031)资助。

*通信联系人。E-mail: zhaohuibai@126.com

能的荧光粉,对于保证白光 LED 的使用性能具有重要意义。

$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (钨铝石榴石)是一种与 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (钇铝石榴石) 晶体结构相同的新型发光基质材料。同时 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 具有熔点高(2 010 $^{\circ}\text{C}$)、密度大($6.73 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)和其他优良的物理化学性质,如可在长期辐射条件下保持稳定的光学和物化性能等^[6]。目前有关 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 基荧光材料的研究主要限制在闪烁体方面,关于在白光 LED 领域的应用报道较少^[7]。

研究发现, $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 荧光粉可被蓝光激发^[8-9],其光学和物化性能稳定性优于 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$,但由于其红光成分不足,限制了在白光 LED 上的应用。此外,研究发现,含稀土离子 Sm^{3+} 的荧光粉在红光区有发射^[10],而 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Sm}$ 荧光粉尚未见报道。本文尝试采用高温固相法制备 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Sm}$ 荧光粉,并研究 $\text{Ce}^{3+},\text{Sm}^{3+}$ 之间的能量传递。以期通过 Sm^{3+} 的引入增加 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 荧光粉中的红色成分,从而提高白光 LED 的显色指数,推动白光 LED 在照明领域的应用。

1 样品制备及表征

以 Al_2O_3 (分析纯)、 Lu_2O_3 (99.99%)、 Sm_2O_3 (99.99%)、 CeO_2 (99.99%)为原料, BaF_2 (分析纯)为助熔剂,碳粉(分析纯)为还原剂,无水乙醇(分析纯)为研磨助剂开展实验研究。按照 $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce},x\text{Sm}$ (x 代表引入 Sm^{3+} 的原子分数, $x=0.01,0.02,0.03,0.04,0.05$)的化学计量比计算各原料用量,将准确称量的各原料放在玛瑙研钵中,以无水乙醇为介质研磨大约 30 min,经干燥后,将粉体装入刚玉坩埚并置于硅钼棒电阻炉。以碳粉为还原剂,采用双坩埚法灼烧样品,按 $480^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}^{-1}$ 的升温速率升至 1550°C 保温 3 h,经冷却、研磨、过筛后得到样品。

利用日本 Rigaku Ultima IV 型 X 射线衍射仪(XRD)进行物相分析,Cu 靶,管电压 40 kV,工作电流 20 mA, $K\alpha_1$ 辐射($\lambda=0.15406 \text{ nm}$),记录 2θ 为 $10^{\circ}\sim 80^{\circ}$ 衍射数据。采用日本岛津 RF-5301PC 型荧光分光光度计测定样品的激发光谱和发射光谱,激发光源为 150 W Xe 灯,扫描速度 $2 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

2 结果与讨论

2.1 XRD 物相分析

对发光性能最佳的单掺 Ce、单掺 Sm 以及双掺 Ce、Sm 的 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 基荧光粉样品进行 X 射线衍射

分析,如图 1 所示,对应样品分别为 $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ 、 $\text{Lu}_{2.937}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.063\text{Sm}$ 、 $\text{Lu}_{2.914}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ 、 0.05Sm 。由图 1 可见,样品衍射峰的位置与 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 的标准卡片(PDF No.73-1368)符合良好,说明在 1550°C 下灼烧 3 h 可形成单一 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 相,为立方晶系石榴石结构,少量引入 Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 未改变样品晶体结构特点。由于 $\text{Sm}^{3+},\text{Ce}^{3+}$ 半径与 Lu^{3+} 半径十分接近,因此 $\text{Sm}^{3+},\text{Ce}^{3+}$ 占据的是 Lu^{3+} 的晶格节点。

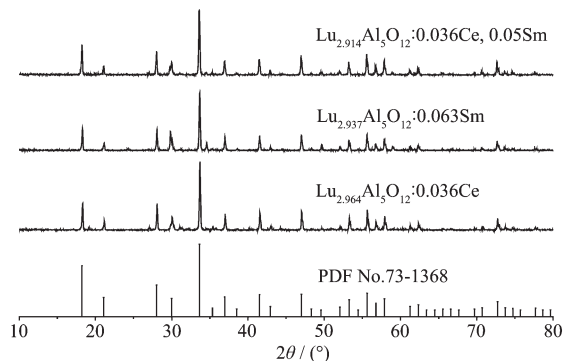


图 1 样品的 XRD 图

Fig.1 X-ray diffraction patterns of the samples

2.2 荧光光谱分析

图 2(a)、(b)分别对应 $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ 样品的激发光谱和发射光谱。以 508 nm 光作为监测波长,样品的激发光谱由峰值波长位于 349 和 464 nm 的 2 个宽带谱组合而成。在 464 nm 蓝光激发下,样品的发射光谱为峰值于 508 nm 的不对称宽带谱,通过高斯拟合可知该光谱由峰值 503、533 nm 的 2 个

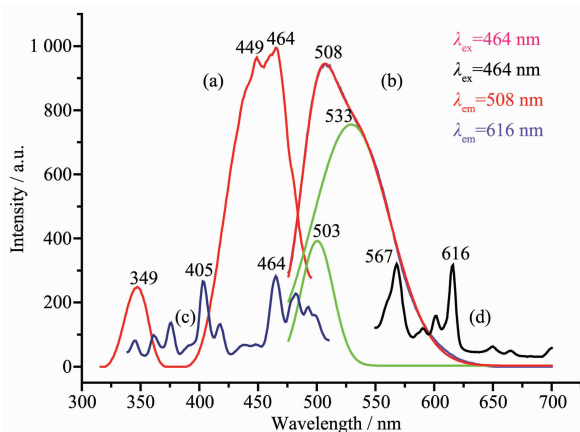


图 2 $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ 样品的激发光谱 (a) 和发射光谱 (b) 和 $\text{Lu}_{2.937}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.063\text{Sm}$ 样品的激发光谱 (c) 和发射光谱 (d)

Fig.2 Excitation spectrum (a) and emission spectrum (b) of $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ and excitation spectrum (c) and emission spectrum (d) of $\text{Lu}_{2.937}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.063\text{Sm}$

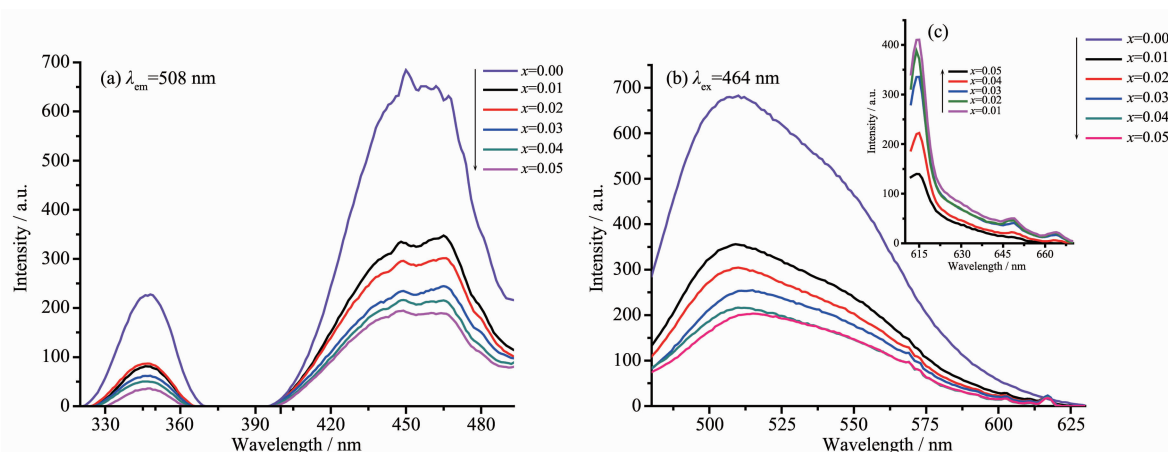


图 3 不同 Sm^{3+} 浓度 $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ 样品的激发光谱 (a)、发射光谱 (b) 和 Sm^{3+} 发射峰的局部放大图 (c)

Fig.3 Excitation spectra (a) and emission spectra (b) of $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ samples with different Sm^{3+} concentrations and partial enlargement of the emission peak of Sm^{3+} (c)

子光谱组合而成, 分别对应 Ce^{3+} 中电子的 $^5D-^4F_{5/2}$ 和 $^5D-^4F_{7/2}$ 能级跃迁^[11-12]。

图 2(c)、(d) 分别对应 $\text{Lu}_{2.937}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.063\text{Sm}$ 样品的激发光谱和发射光谱。以 616 nm 光作为监测波长, 激发光谱峰值分别为 360、375、405、417、464、482 nm, 对应 Sm^{3+} 的 $^6H_{5/2}-^4L_{7/2}$, $^6H_{5/2}-^6P_{5/2}$, $^6H_{5/2}-^4F_{7/2}$, $^6H_{5/2}-(^6P, ^4P)_{5/2}$, $^6H_{5/2}-^4G_{9/2}$ 和 $^6H_{5/2}-^4I_{11/2}$ 的能级跃迁^[13-14]。在 464 nm 光的激发下, 产生不同峰值波长的窄带发射, 其中 567 nm 的发射峰归因于 Sm^{3+} 的 $^4G_{5/2}-^6H_{5/2}$ 跃迁; 590、600、616 nm 的窄带峰源于 Sm^{3+} 的 $^4G_{5/2}-^6H_{7/2}$ 跃迁劈裂; 位于 650、665 nm 的发射峰, 归属于 Sm^{3+} 的 $^4G_{5/2}-^6H_{9/2}$ 跃迁劈裂^[15]。

图 3(a) 为 $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ ($x=0, 0.01, 0.02, 0.03, 0.04, 0.05$) 样品的激发光谱。由图可知, 以 507 nm 作为监测波长, 测试样品的激发光谱均为形状相同的宽带谱, 峰值波长分别位于 349、464 nm, 且光谱形状和峰值位置与 $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ (图 2(a)) 的激发光谱相同。随着 Sm^{3+} 浓度的增加, 以 Ce^{3+} 离子发射峰值波长 508 nm 作为监测波长测试样品激发峰强度均有所降低。由图 3(b) 可知, 激发波长为 464 nm 时, 产生了波长范围在 480~600 nm 源于 Ce^{3+} 的宽带谱以及主峰在 616 nm 源于 Sm^{3+} 的窄带谱。分析可知: 波长范围 480~600 nm 的发射峰归因于 Ce^{3+} 的 $^5D-^4F$ 跃迁发射^[17]; 波长为 616 nm 的发射峰归因于 Sm^{3+} 的 $^4G_{5/2}-^6H_{7/2}$ 跃迁发射^[16-17]; 此外由图 3(c) 可知, 峰值位于 650、669 nm 的发射峰, 归属于 Sm^{3+} 的 $^4G_{5/2}-^6H_{9/2}$ 、 $^4G_{5/2}-^6H_{11/2}$ 跃迁发射^[16], 由于 Sm^{3+} 的特征发射峰的出现, 一定程度上增加了 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$

绿色荧光粉的红光成分。

图 4 为以 Sm^{3+} 的特征发射波 614 nm 作为监测波长, 测试不同 Sm^{3+} 浓度 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}, \text{Sm}$ 样品的激发光谱。由图可见, 激发光谱形状及主激发峰位置与图 3(a) 基本相同, 呈现 Ce^{3+} 的特征激发峰, 同时在 377 nm 处出现了微弱的 Sm^{3+} 的特征激发峰。源于 Ce^{3+} 离子的特征激发峰(峰值为 464 nm)的发光强度随着 Sm^{3+} 浓度的增加而增加, 说明 Ce^{3+} 、 Sm^{3+} 之间存在能量传递。图 5 为 464 nm 蓝光激发测试样品的发射光强度与 Sm^{3+} 浓度变化的关系曲线, 纵坐标为样品的主发射峰(峰值为 508 nm)在 480~600 nm 间的积分强度。由图 5 可知, $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}, \text{Sm}$ 样品中随着 Sm^{3+} 浓度的增加, Ce^{3+} 的发光强度逐渐减弱, 且由图 3(c) 可知 Sm^{3+} 的发光强度逐渐增加, 进一步说

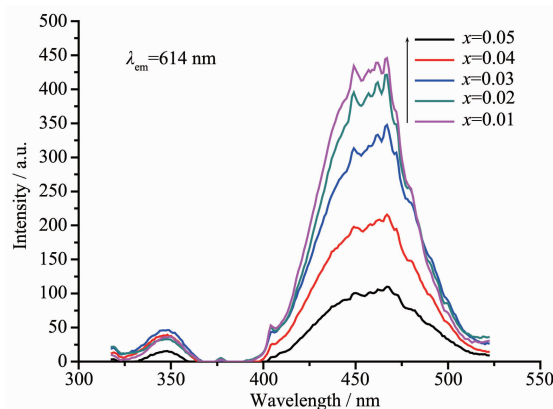
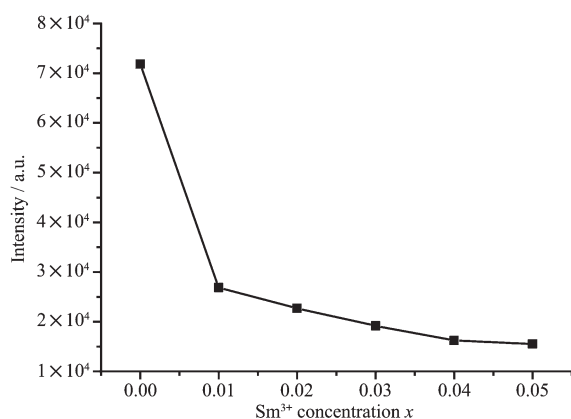


图 4 不同 Sm^{3+} 浓度 $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ 样品的激发光谱

Fig.4 Excitation spectra of $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ samples with different Sm^{3+} concentrations

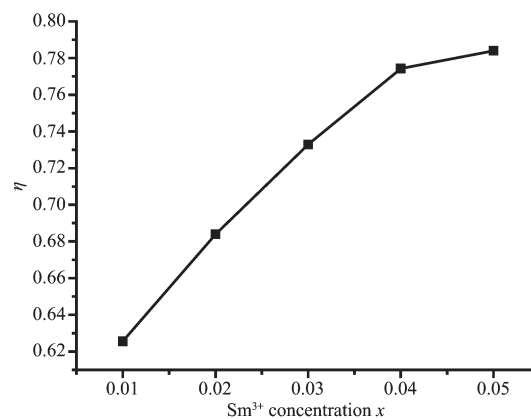
图 5 Ce^{3+} 发光强度随 Sm^{3+} 浓度变化图Fig.5 Luminescence intensity of Ce^{3+} varies with the concentration of Sm^{3+}

明了 Ce^{3+} 将部分能量传递给 Sm^{3+} 。由图 2 (b)、(c) 可知, Sm^{3+} 的激发光谱与 Ce^{3+} 的发射光谱有重叠, 说明 Sm^{3+} 、 Ce^{3+} 之间的能量传递方式属于非辐射共振。

通常, 敏化剂到激活剂的能量传递效率可以表达为^[18-19]:

$$\eta = 1 - I_s / I_{s0} \quad (1)$$

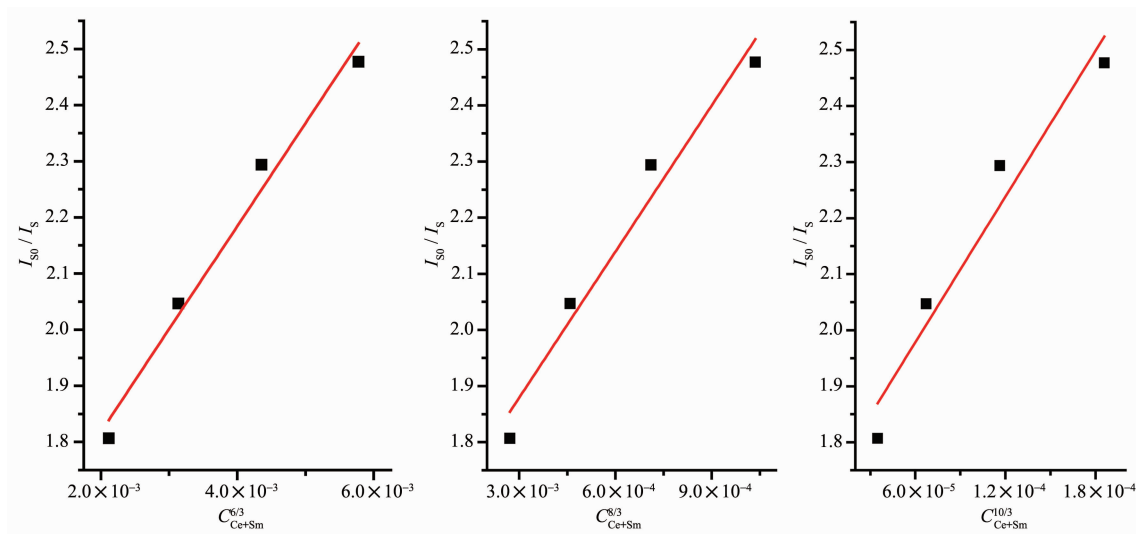
η 是能量传递效率, I_s 和 I_{s0} 分别为敏化剂存在和不存在激活剂时的发光强度。图 6 为 Ce^{3+} 到 Sm^{3+} 的能量传递效率曲线, 可见 Ce^{3+} 向 Sm^{3+} 能量传递效率随着 Sm^{3+} 浓度的增大而增大, 且当 Sm^{3+} 浓度为 0.05 时, 传递效率达 77.42%。因为 Ce^{3+} (敏化剂) 的发光强度 (I_s) 随着 Sm^{3+} (激活剂) 掺杂浓度的增大逐渐减小, 所以 Ce^{3+} 向 Sm^{3+} 能量传递效率 (η) 随着 x 值的增大而增大, 但是增加速率随着 Sm^{3+} 浓度的增加而减

图 6 不同 Sm^{3+} 浓度 $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ 的能量传递效率Fig.6 Energy transfer efficiency of $\text{Lu}_{2.964-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, x\text{Sm}$ with different Sm^{3+} concentration

慢。这揭示了在固定 Ce^{3+} 的掺杂浓度下, 随着 Sm^{3+} 掺杂浓度的持续增加, Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 之间的能量传递效率逐渐趋向于最大值。

共振能量传递机理一般包括以下 2 种作用: 一个是交换作用, 另一个是电多极相互作用^[20-21]。如果能量传递是交换作用引起的, 敏化剂和激活剂之间的临界距离应该小于 0.4 nm^[21]。在一些体系中, 浓度猝灭是因为激活剂间的能量传递达到晶体的能量表面^[22]。 Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 之间的能量传递效率可以用浓度猝灭方法来计算。根据 Blasse 提出的机理^[22], 临界距离 R_c 可以表示为:

$$R_c = 2 \left(\frac{3V}{4\pi x_a N} \right)^{1/3} \quad (2)$$

图 7 Ce^{3+} 的 I_{s0}/I_s 与 $C_{\text{Ce+Sm}}^{6/3}$, $C_{\text{Ce+Sm}}^{8/3}$, $C_{\text{Ce+Sm}}^{10/3}$ 之间的关系曲线Fig.7 Relationship between I_{s0}/I_s and $C_{\text{Ce+Sm}}^{6/3}$, $C_{\text{Ce+Sm}}^{8/3}$, $C_{\text{Ce+Sm}}^{10/3}$

其中 N 为在一个晶胞中可以取代的格位数, x_a 为 Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 的总浓度, V 为晶胞体积。对 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 基质, $N=24$, $V=1.687\ 71\ \text{nm}^3$ 。当临界浓度 x_a 为 0.056 时, Ce^{3+} 的发光强度为不掺杂 Sm^{3+} 时强度的一半 ($\text{Lu}_{2.944}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}, 0.02\text{Sm}$ 的主峰 (508 nm) 相对强度为 $\text{Lu}_{2.964}\text{Al}_5\text{O}_{12}:0.036\text{Ce}$ 的主峰 (508 nm) 相对强度的 1/2), 因此能量传递的临界距离 R_C 计算为 1.339 nm。当 $R_{\text{Ce-Sm}} > R_C$ 时, 主要是 Ce^{3+} 的发光; 当 $R_{\text{Ce-Sm}} < R_C$ 时, Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 的能量传递占主导地位。这一数值比 0.4 nm 大, 揭示了能量传递通过交换作用机理的几率很小。因此 Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 之间的能量传递主要是通过电多极相互作用机理进行的^[20-21, 23]。根据 Dexter 的多极相互作用表达式和 Reisfeld 的近似法, 可以用下列关系表达式^[20-21, 23]:

$$\eta_0/\eta \propto C_{\text{Ce+Sm}}^{n/3} \quad (3)$$

其中 η_0 和 η 分别为不存在和存在 Sm^{3+} 时, Ce^{3+} 的荧光量子效率; C 为 Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 浓度之和; $n=6, 8, 10$, 分别对应偶极-偶极、偶极-四极和四极-四极相互作用。 η_0/η 可以用相应的发光强度 $I_{\text{S0}}/I_{\text{S}}$ 来近似计算, 两者成正比^[24-25], 因此:

$$I_{\text{S0}}/I_{\text{S}} \propto C_{\text{Ce+Sm}}^{n/3} \quad (4)$$

其中 I_{S0} 为 Sm^{3+} 不存在时 Ce^{3+} 的发光强度, I_{S} 为 Sm^{3+} 存在时 Ce^{3+} 的发光强度。图 7 给出了当 $n=6, 8, 10$ 时, $I_{\text{S0}}/I_{\text{S}}$ 与 $C_{\text{Ce+Sm}}^{n/3}$ 之间的关系曲线图。当 $n=6, 8, 10$ 时, 直线的 R 值分别为 0.973 5, 0.952 08, 0.925 44, 由此可知: Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 之间的能量传递机理为偶极-偶极相互作用, 这与张家骅等的结论一致^[26]。因此, 在 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 基质中, Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 之间的偶极-偶极相互作用在能量传递机理中占主导地位。

3 结 论

采用高温固相法在 1 550 °C 下灼烧 3 h 制备了 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}, \text{Sm}^{3+}$ 荧光粉, 样品具有与立方 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 晶体相同的结构。样品在 464 nm 蓝光激发下产生了 480~600 nm 的不对称宽带谱及 614 nm 的窄带发射谱。宽带谱经高斯分解, 对应的 503、533 nm 2 个子发射带归属于 Ce^{3+} 的 $^5D-^4F_{5/2}$ 和 $^5D-^4F_{7/2}$ 跃迁; 614 nm 特征发射谱对应 Sm^{3+} 的 $^4G_{5/2}-^6H_{7/2}$ 跃迁。 Sm^{3+} 的特征发射峰的出现, 一定程度上增加了 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ 绿色荧光粉的红光成分, 可提高器件的显色指数。以 Sm^{3+} 的特征发射峰 614 nm 作为监测波长, 测得的激发光谱中出现了 Ce^{3+} 激发峰及微弱

的 Sm^{3+} 激发峰, 说明 $\text{Ce}^{3+}, \text{Sm}^{3+}$ 之间存在能量传递; 随着 Sm^{3+} 浓度的增加 Ce^{3+} 的发光强度逐渐减弱, 当 Sm^{3+} 浓度为 0.05 时, $\text{Ce}^{3+}, \text{Sm}^{3+}$ 之间能量传递效率达到 77.42%。根据 Blasse 理论计算能量传递的临界距离为 1.339 nm, 说明 Ce^{3+} 和 Sm^{3+} 之间的能量传递源于电多极相互作用机理。根据 Dexter 的多极相互作用表达式和 Reisfeld 的近似法, 通过数据拟合证明了 $\text{Ce}^{3+}, \text{Sm}^{3+}$ 之间能量传递方式为偶极-偶极相互作用。

参考文献:

- [1] BAI Sheng-Mao(白生茂), WANG Jing(王晶), MIAO Hong-Li(苗洪利), et al. *Acta Opt. Sin.*(光学学报), **2010**, **30**(5):1402-1405
- [2] YIN Lu-Qiao(殷录桥), YANG Wei-Qiao(杨卫桥), LI Shu-Zhi(李抒智), et al. *Acta Opt. Sin.*(光学学报), **2011**, **31**(5):230-236
- [3] LU Shen-Zhou(陆神洲), YANG Qiu-Hong(杨秋红), XU Feng(徐峰), et al. *Acta Opt. Sin.*(光学学报), **2012**, **32**(3):254-259
- [4] SHI Yu-Rong(史玉茸). *Thesis for the Doctorate of Lanzhou University*(兰州大学博士论文). **2014**.
- [5] QIAN Ke-Yuan(钱可元), HU Fei(胡飞), WU Hui-Ying(吴慧颖), et al. *Semicond. Optoelectron.*(半导体光电), **2005**, **26**(2):118-120
- [6] Li H L, Liu X J, Huang L P, et al. *Ceram. Int.*, **2007**, **33**:1141-1143
- [7] XING Lin(邢琳), YANG Lin-Feng(杨林峰). *J. Ceram.*(陶瓷学报), **2011**, **32**(4):621-625
- [8] WANG Lin-Xiang(王林香), YIN Min(尹敏), GUO Chang-Xing(郭常新), et al. *J. Rare Earths*(稀土学报), **2010**, **28**(1):16-21
- [9] WANG Lin-Xiang(王林香), ZHU Heng-Jiang(祝恒江), WU Ling-Yuan(吴凌远), et al. *Spectrosc. Spectral Anal.*(光谱学与光谱分析), **2011**, **31**(2):308-313
- [10] GUAN Li(关丽), WEI Wei(魏伟), LIU Chao(刘超), et al. *J. Chin. Ceram. Soc.*(硅酸盐学报), **2013**, **41**(1):62-65
- [11] JIN Huai-Dong(金怀东). *Thesis for the Master of Wenzhou University*(温州大学硕士论文). **2011**.
- [12] KONG Li(孔丽), GAN Shu-Cai(甘树才), HONG Guang-Yan(洪广言), et al. *Chin. J. Lumin.*(发光学报), **2007**, **28**(3):393-396
- [13] SHI Peng-Tu(石鹏途), XIONG Xiao-Su(熊晓甦), CHEN Hong-Jun(陈红军), et al. *Chin. Rare Earths*(稀土), **2010**, **31**(2):1-6
- [14] KONG Li(孔丽), GAN Shu-Cai(甘树才), HONG Guang-Yan(洪广言), et al. *Chem. J. Chinese Universities*(高等学校化

- 学学报), **2008**,**29**(4):673-676
- [15]HUA Wei(华伟), XIANG Wei-Dong(向卫东), DONG Yong-Jun(董永军), et al. *J. Chin. Ceram. Soc.*(硅酸盐学报), **2011**,**39**(8):1344-1348
- [16]YE Ren-Guang(叶仁广), XU Shi-Qing(徐时清), HUA You-Jie(华有杰), et al. *Acta Optica Sin.*(光学学报), **2010**,**30**(7):1878-1882
- [17]CHEN Jie(陈杰), ZHANG Qi-Chong(张其冲), WANG Zhi-Yuan(王志远), et al. *J. Shanghai Inst. Technol.: Nat. Sci.*(上海应用技术学院学报:自然科学版), **2014**,**14**(2):109-112
- [18]Paulose P I, Jose G, Thomas V, et al. *J. Phys. Chem. Solids*, **2003**,**64**(5):841-846
- [19]Reisfeld R, Greenberg E, Velapoldi R, et al. *J. Chem. Phys.*, **1972**,**56**:1698-1705
- [20]Antipeuko B M , Bataev I M, Ermolaev V L, et al. *Opt. Spectrosc.*, **1970**,**29**:177
- [21]Dexter D L, Schulman J H. *J. Chem. Phys.*, **1954**,**22**(6):1063-1071
- [22]Blasse G. *Philips Res. Rep.*, **1969**,**24**:131-134
- [23]You H P, Zhang J L, Hong G Y, et al. *J. Phys. Chem. C*, **2007**,**111**:10657-10661
- [24]Lin C C, Liu R S, Tang Y S, et al. *J. Electron. Chem. Soc.*, **2005**,**155**:J248-J251
- [25]Kwon K H, Im W B, Jang H S, et al. *Inorg. Chem.*, **2009**,**48**(24):11525-11532
- [26]LIN Jian(林剑), HAO Zhen-Dong(郝振东), ZHANG Jia-Ye(张家骅), et al. *Chin. J. Lumin.*(发光学报), **2013**,**34**(8):953-958