

低温燃烧合成 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:\text{Eu}$ 荧光粉及其发光性能

强耀春^{1,2}, 张宝林^{1,2}

- (1. 桂林理工大学 有色金属及材料加工新技术教育部重点实验室, 广西 桂林, 541004;
2. 桂林理工大学 材料科学与工程学院, 广西 桂林, 541004)

摘要:以尿素为燃料,金属硝酸盐为氧化剂, $(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4\text{Si}$ 为硅源,采用低温燃烧及回火还原处理合成用于白光 LED 的 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:\text{Eu}$ 荧光粉。讨论助熔剂 SrCl_2 用量和回火温度对荧光粉相组成的影响,研究合成产物的发光性能,初步提出合成反应机制。燃烧合成中熔融的 SrCl_2 为整个反应提供了一个半流动态的环境,促使生成的杂相 SrCO_3 分解。低温燃烧直接产物 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{3+}$ 非晶材料在波长 393 nm 近紫外光的激发下最强发射峰值是波长为 612 nm 红光;处理后晶相产物 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 发射峰值是波长为 480 nm 的蓝光和 543 nm 的黄绿光,分别是由处于不同格位上的 $\text{Eu}^{2+}(\)$ 和 $\text{Eu}^{2+}(\)$ 的 $5d \rightarrow 4f$ 跃迁产生的。用不同的近紫外光(380~410 nm)激发时,样品发射出的蓝光(480 nm)和黄绿光(543 nm)的强度都随着激发光波长的增大而减小,而且蓝光的强度减小非常明显,同时,随着激发光波长的增大黄绿光波长增大。

关键词:低温燃烧合成;正硅酸盐荧光粉;发光二极管;发光性能

中图分类号:O482.31;TB3

文献标志码:A

文章编号:1672-7207(2011)05-1270-06

Low temperature combustion synthesis and luminescence of $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:\text{Eu}$ phosphor

QIANG Yao-chun^{1,2}, ZHANG Bao-lin^{1,2}

- (1. Key Laboratory of Nonferrous and Materials Processing Technology, Ministry of Education, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China;
2. College of Materials Science and Engineering, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China)

Abstract: The $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:\text{Eu}$ phosphors for white-light-emitting diodes were synthesized using low temperature combustion method. The influences of the amount of the flux SrCl_2 and calcining temperature on the phase compositions of the products were studied and their photoluminescence was investigated. The reaction mechanism was proposed initially. The SrCl_2 flux not only provides a semi-dynamic environment in which the combustion reaction takes place, but also avoids the unintended phase SrCO_3 . Amorphous material $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{3+}$ emits the strongest peak at 612 nm red light when it is excited in the 393 nm near ultraviolet (UV) light. The emission spectrum of $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ fabricated by the low temperature combustion method and calcined in reducing atmosphere shows a green-yellow broadband emission peak at around 543 nm and a blue band at 480 nm, which are respectively generated by the $5d \rightarrow 4f$ transitions of the $\text{Eu}^{2+}(\)$ and $\text{Eu}^{2+}(\)$ at different lattice positions. When excited with near UV (380–410 nm), the intensity of the blue light (480 nm) and yellow green light (543 nm) increases with the decrease of the excitation wavelength, and the intensity of the blue light decreases obviously, and at the same time, with the increase of the excitation wavelength, the wavelength of the yellow-green light emitted increases.

Key words: low temperature combustion synthesis; orthosilicate phosphor; light-emitting diode; luminescence properties

收稿日期:2010-05-15;修回日期:2010-08-02

基金项目:新材料及其制备新技术广西壮族自治区重点实验室开放基金资助项目(0842003-3)

通信作者:张宝林(1967-),男,河南新乡人,博士,研究员,从事无机非金属材料研究;电话:0773-5896671;E-mail:zhangbaolin@glite.edu.cn

白光 LED 使用寿命长,效率高,节能环保,为 21 世纪重点发展的绿色照明光源^[1]。目前,产业化的白光 LED 制作方式是把蓝光 LED 管芯和黄色 YAG:Ce³⁺微晶组合,管芯发出的蓝光一部分从微晶的空隙透出,其余部分经微晶转为宽带发射的黄光,二者叠加得到白光^[2]。然而,这种组合而成的白光 LED 专利一直被国外企业所垄断,再加上 YAG 荧光粉有易潮解、热稳定性差等缺陷,所以研发其他体系新型荧光粉成为人们关注的焦点^[3-4]。以碱土硅酸盐为基质的新型白光用荧光粉较 YAG 体系,具有化学性质稳定、耐老化性能优异、光转化效率高等优点^[5]而受到重视。近年来,人们对以正硅酸锶 Sr_2SiO_4 为基质的荧光粉进行了大量研究。Park 等^[6]把 $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 荧光粉应用于近紫外芯片的白光 LED,所得的白光 LED 显色指数和发光效率均偏低; Kim 等^[7]研究了 $\text{M}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ ($\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) 荧光粉发光颜色与温度之间的关系。Lee 等^[8]研究了助熔剂用量、烧结温度及 Eu^{2+} 浓度对 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 结构和发光的影响。王细凤等^[9]采用高温固相法合成了 $\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 荧光粉,分析了不同热处理温度下荧光粉的形貌以及不同 Ba 含量对荧光粉发光性能的影响。Park 等^[10]又研究了 Ba^{2+} 和 Mg^{2+} 共掺杂的 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 在 450~470 nm 蓝光激发下的发光性能,与商业 YAG:Ce 相比较,具有发光效率高、色温低等优点。然而,他们都是采用固相法合成,合成温度在 1 200 以上,合成时间较长,反应不彻底且容易生成杂相。由于 SiO_2 原料惰性强,高温固相法不易制备纯相硅酸盐荧光粉材料,而基质物相组成又是决定发光效率的一个关键因素^[11],所以,获得纯相材料是科研工作者追求的目标之一。与高温固相法相比,低温燃烧法具有化学计量比准确、回火温度低、回火时间短等优点^[12]。以尿素为燃料、金属硝酸盐为氧化剂的燃烧反应火焰绝热温度可达 1 780^[13],足以满足 Sr_2SiO_4 基质荧光粉的合成。在此,本文作者研究低温燃烧法合成 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 荧光材料及其发光性能。

1 实验

1.1 合成方法

按照 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 的化学计量比称量 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ (分析纯)、 $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ (分析纯)、 $\text{Eu}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (纯度 99.99%) 以及尿素(分析纯)溶解于适量去离子水

中,得到溶液 A;称取化学计量比所需的 $(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4\text{Si}$ (分析纯)将其溶解在体积约为去离子水 4 倍的无水乙醇中,得到溶液 B;再按照 $(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4\text{Si}$ 与 SrCl_2 摩尔比为 1:X ($X=0, 0.25, 0.5$ 和 1.0) 的比例称取 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (A.R) 作为助熔剂溶解到 A 溶液中。将 A 和 B 2 种溶液混合,在 80 搅拌 1~3 h,在搅匀过程中体系变为凝胶。转入 550 的马弗炉中,混合物发生鼓泡、冒烟起火迅速燃烧,火焰自行维持 1~3 min,保温 30 min,得到白色疏松多孔的固体生成物。将生成物研磨成粉末,装入氧化铝坩埚中在 670~970 碳还原气氛下热处理 1 h,研磨后在去离子水中浸泡 24 h 除去 SrCl_2 ,再于 80 烘干即得到粉末样品。

1.2 样品性质的测定

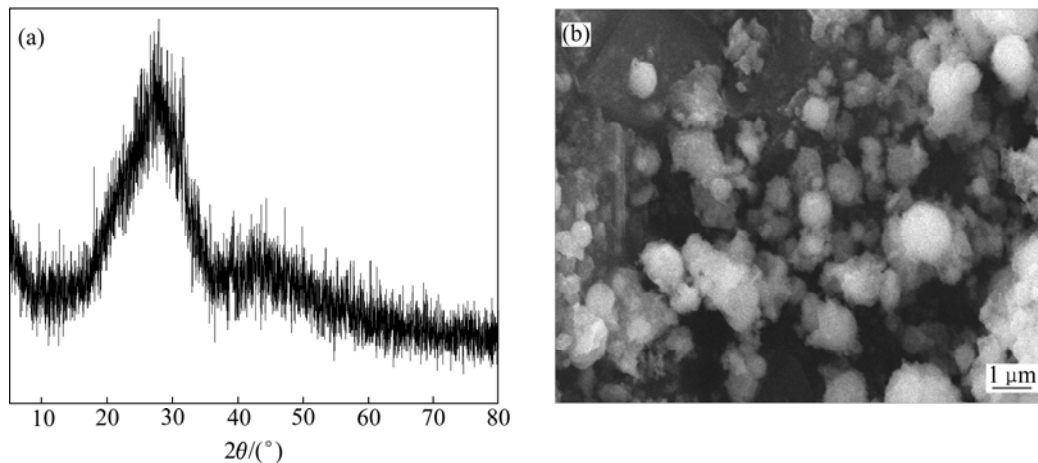
采用法国 FL3-P-TCSPC 时间分辨荧光光谱仪对样品进行荧光分析(发射狭缝宽度为 2.0 nm,激发狭缝宽度为 2.0 nm,光子计数器工作电压为 950 V)。X 线衍射仪采用采用荷兰帕纳科公司生产的 X'pert PRO (辐射源为 Cu 靶 K_α 辐射, $\lambda=1.54060$ nm,电流为 55 mA, 2.2 kW)。用日本 JSM-6380 LV 扫描电镜观察样品的形貌。所有测试都在室温下进行。

2 实验结果与讨论

2.1 燃烧合成产物的性能

图 1 所示为燃烧合成产物(原料中添加 0.5 mol $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)的 XRD 谱和 SEM 照片。从 XRD 谱看到低温燃烧法直接得到的产物为非晶态。从 SEM 照片可以看出:产物的颗粒粒径小,而且大多为更细微晶粒的聚集体。燃烧合成反应持续时间短,降温速率大,使产物为非晶态,反应放出的大量气体使产物疏松、粒径小。

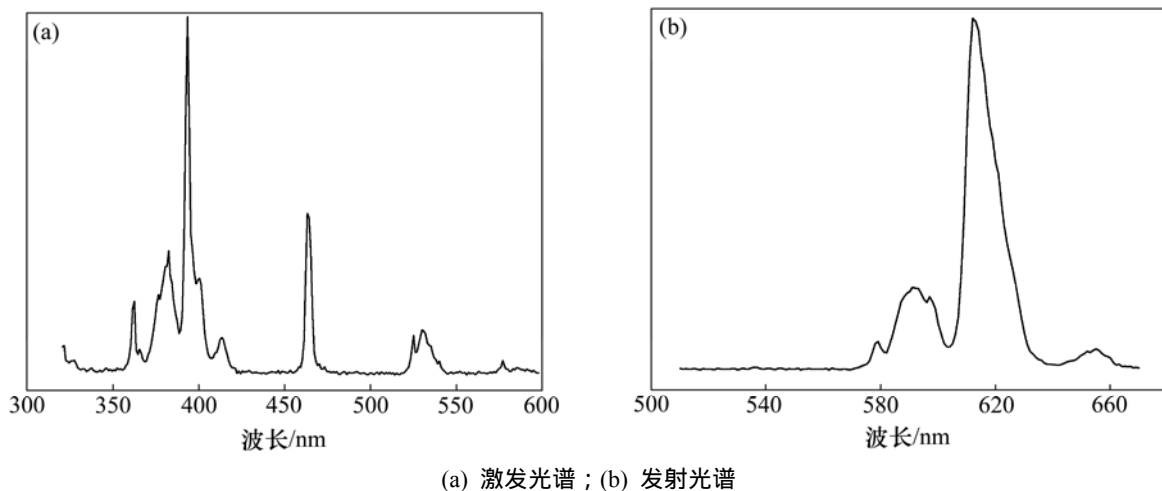
图 2(a)和(b)所示分别为燃烧法直接合成产物的激发光谱和发射光谱。可见:在 393 nm 近紫外光激发下材料的发射光谱包括 5 个发射峰,峰值为 578, (591, 597), 612 和 650 nm, 分别对应于 Eu^{3+} 的 $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_0$, $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_1$, $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_2$ 和 $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_3$ 辐射跃迁,其中以 $^5\text{D}_0 \rightarrow ^7\text{F}_2$ 跃迁产生的 612 nm 发射峰最强。这一结果与文献报道测试的 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 结晶材料的激发与发射光谱基本一致^[14-15]。这说明 Eu^{3+} 已经进入 Sr_2SiO_4 的结构中,低温燃烧的直接产物为非晶态的 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 材料。非晶态的 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 材料发光性能尚少有报道。



(a) XRD 谱 ; (b) SEM 照片

图 1 低温燃烧直接合成产物的 XRD 谱和 SEM 照片

Fig.1 XRD pattern and SEM photograph of product directly prepared by low temperature combustion synthesis



(a) 激发光谱 ; (b) 发射光谱

图 2 低温燃烧法直接合成的产物的激发光谱和发射光谱

Fig.2 Excitation and emission spectra of product directly prepared by low temperature combustion method

2.2 助熔剂对产物相组成的影响

由于助熔剂本身具有较低的熔点,在高温下熔融后又可以提供一半流动态的环境,有利于反应物质点间的扩散及产物的结晶。图 3 所示为经过 870 和 1 h 回火处理且添加不同物质的量 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 的 XRD 谱。从图 3 可以看出:在 1 mol 的 Sr_2SiO_4 合成原料中,添加 0.5 mol 和 1.0 mol 的 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 时均能生成 α 相的 Sr_2SiO_4 , 其 XRD 谱都与国际标准卡片 JCPDS 39-1256 的一致;当添加 0.25 mol 的 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 时,生成的产物除有 Sr_2SiO_4 相外,还有少量未知杂相;当不添加 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 时,生成的产物只含有少量的 Sr_2SiO_4 相,而其主要晶相是 SrCO_3 (JCPDS 05-0418);添加 0.25~1.0 mol $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 后, SrCl_2 助熔剂有效地消除了 SrCO_3 相,最终得到纯 α 相的 Sr_2SiO_4 。同条件

实验中发现采用其他的常用助熔剂如硼酸和氯化铵未能合成纯相 Sr_2SiO_4 。

2.3 回火温度对产物性能的影响

图 4 所示为燃烧产物(添加 0.5 mol 的 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)在不同温度下还原处理后的 XRD 谱。从图 4 可见:于 670 回火 1 h 得到的产物仍是非晶态的,于 800~870 回火 1 h 可以得到结晶良好的纯 α 相 Sr_2SiO_4 ,于 970 回火 1 h 得到的是 α 相和 β 相(JCPDS 38-0271)的混合相。目前报道的 Sr_2SiO_4 基质荧光粉大多数采用高温固相法合成,合成温度在 1 200 左右,而低温燃烧合成产物在 800 回火 1 h 即能得到纯 α 相 Sr_2SiO_4 。这归因于低温燃烧法可以使多组分体系的均匀度达到分子或原子级^[12],非常有利于反应过程中质点的扩散及反应。

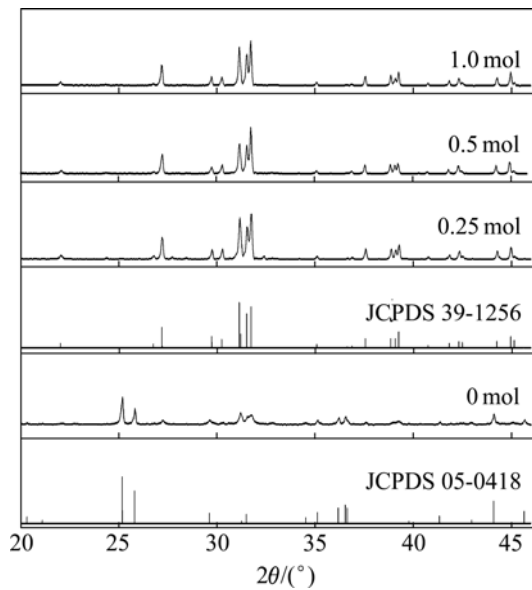


图 3 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 物质的量对产物结构的影响

Fig.3 XRD patterns of products added with different amounts of $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$

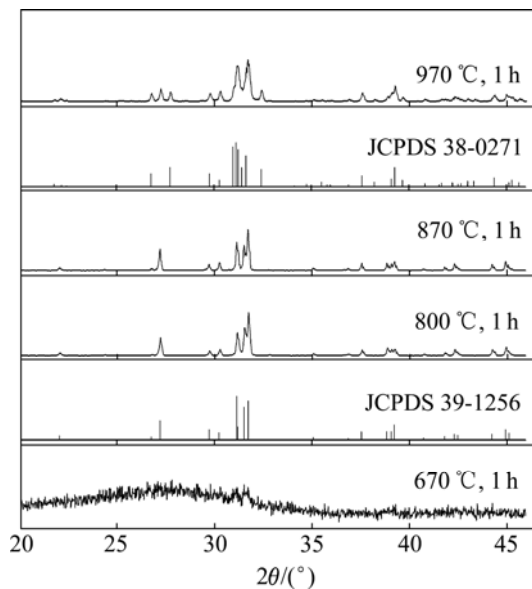


图 4 不同回火温度下产物的 XRD 谱

Fig.4 XRD patterns of products calcined at different temperatures for 1 h

2.4 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 的发光性能

图 5 所示为经过 870 °C 回火处理 1 h 后 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 样品的激发和发射光谱。从图 5 可见： $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 样品在 380 nm 光的激发下发射光谱由 2 个发射带组成，经过 Origin7.0 软件 Gaussian 曲线拟合，峰值分别位于 480 和 543 nm。在 Sr_2SiO_4 中， Sr^{2+} 有 $\text{Sr}^{2+}(\text{I})$ 和 $\text{Sr}^{2+}(\text{II})$ 2 种格位。这 2 种格位的数目相等， $\text{Sr}^{2+}(\text{I})$ 是十配位的， $\text{Sr}^{2+}(\text{II})$ 是九

配位的，短波发射归因于 Eu^{2+} 取代了 $\text{Sr}^{2+}(\text{I})$ 格位，长波发射归因于 Eu^{2+} 取代了 $\text{Sr}^{2+}(\text{II})$ 格位^[16]。当 Eu^{2+} 替代 Sr^{2+} 时，也相应地形成 2 种格位环境，所以，480 和 543 nm 的发射分别是处于不同格位上的 $\text{Eu}^{2+}(\text{I})$ 和 $\text{Eu}^{2+}(\text{II})$ 的 $5d \rightarrow 4f$ 跃迁产生的。分析图 3 得出： $\text{Eu}^{2+}(\text{I})$ 对短波长的紫外光(约 340 nm)吸收较强，而 $\text{Eu}^{2+}(\text{II})$ 对较长波长的紫外光(约 370 nm)吸收较强，两者的交叉点在 380 nm 左右。在不同的近紫外光(380~410 nm)激发时，样品中 $\text{Eu}^{2+}(\text{I})$ 和 $\text{Eu}^{2+}(\text{II})$ 2 个发光中心发出的蓝光(480 nm)和黄绿光(543 nm)的强度都随着激发波长的增大而减小，而且蓝光明显减小。同时，随着激发光波长的增大，黄绿光波长增大。

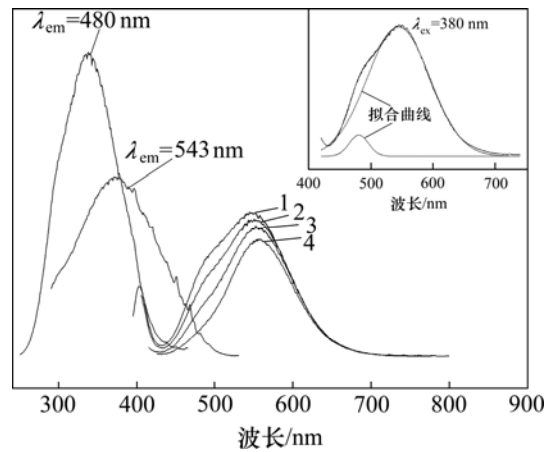


图 5 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 样品的激发与发射光谱图

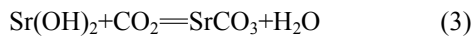
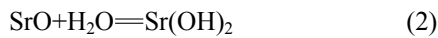
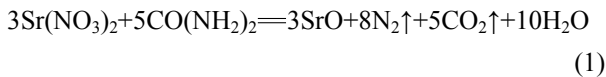
Fig.5 Excitation and emission spectra of $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ phosphor prepared by low temperature combustion method

3 反应机制

在实验所述的 A 和 B 2 种混合溶液中，正硅酸乙酯($\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4\text{Si}$ 发生了水解-缩合反应，反应体系中出现微小分散的胶体粒子，混合物为溶胶；而发生聚合反应时，这些胶体粒子通过范德华力、氢键或化学键力相互联结而形成一种空间开放的骨架结构，混合物变为凝胶^[17]。此时被水、乙醇溶解的各种硝酸盐、 $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$ 及 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 均匀地分布在胶体的骨架结构之中。

将凝胶放入 550 °C 的马弗炉后，酒精首先挥发燃烧，随即引发凝胶中的硝酸盐与 $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$ 发生剧烈的氧化还原反应，瞬时放出大量热量和 CO_2 ， H_2O 和 N_2 等气体，并伴有明亮的火焰，火焰自行维持 1~3 min。

放出的大量热量使 SrCl_2 瞬间熔融, 为后继反应提供一个半流动态的环境, 促进体系中的反应固体产物与二氧化硅发生反应: $(\text{Sr}, \text{Ba})\text{O} + \text{SiO}_2 \rightarrow (\text{Sr}, \text{Ba})_2\text{SiO}_4$ 。本文作者认为不添加 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 时, 合成中出现的杂相 SrCO_3 只可能生成于燃烧反应过程中。因为硝酸是强酸, 碳酸是弱酸, 化学反应 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{SrCO}_3 + \text{H}_2\text{NO}_3$ 不会发生, 所以, 原料混合过程中, 溶液和凝胶中不可能产生 SrCO_3 沉淀。推断燃烧反应过程中产生 SrCO_3 是由于在一定温度下有如下反应发生:



添加 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 后, SrCl_2 在高温下熔融, 不但促进了杂相 SrCO_3 的分解, 而且有利于目标产物的生成, 即 $\text{SrCO}_3 \rightarrow \text{SrO} + \text{CO}_2\uparrow$, $(\text{Sr}, \text{Ba})\text{O} + \text{SiO}_2 \rightarrow (\text{Sr}, \text{Ba})_2\text{SiO}_4$ 。当快速氧化还原反应结束后, 温度急剧下降, 使产物为非晶态(图 1)。整个低温燃烧合成反应过程如图 6 所示。

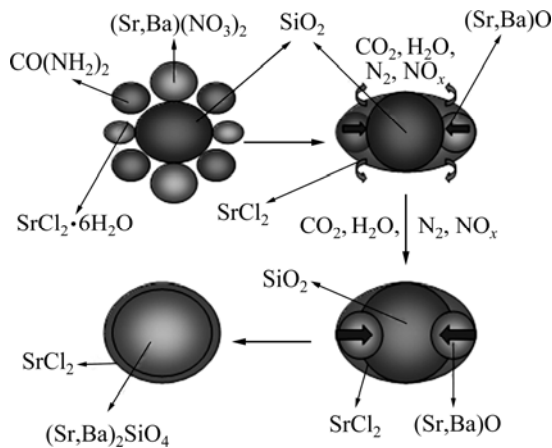


图 6 低温燃烧合成反应示意图

Fig.6 Schematic diagram of low temperature combustion synthesis

4 结论

(1) 采用低温燃烧法合成的非晶态前驱体, 经过较短时间(1 h)和较低温度(800)回火还原处理, 合成了可用于白光 LED 高纯 α 相 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 荧光粉。

(2) 提出了反应机理, 合适的助熔剂对于获得纯 α

相的 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 荧光粉有重要的影响; 添加 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 后, SrCl_2 在高温下熔融, 促进了杂相 SrCO_3 的分解。

(3) 低温燃烧直接产物是非晶材料在 393 nm 近紫外光的激发下最强发射峰值为 612 nm 的红光。

(4) 碳还原气氛下热处理后晶相产物 $\text{Sr}_{1.93}\text{Ba}_{0.05}\text{SiO}_4:0.02\text{Eu}^{2+}$ 荧光粉用不同的近紫外光(380~410 nm)激发时, 样品中 $\text{Eu}^{2+}(\)$ 和 $\text{Eu}^{2+}(\)$ 2 个发光中心发出的蓝光(480 nm)和黄绿光(543 nm)的强度都随着激发光波长的增大而减小, 而且蓝光强度减小非常明显。同时, 随着激发光波长的增大, 黄绿光波长增大。

参考文献:

- [1] 梁春广. 半导体照明灯[J]. 半导体技术, 2000, 25(1): 1-2.
LIANG Chun-guang. Semiconductor lighting[J]. Semiconductor Technology, 2000, 25(1): 1-2.
- [2] 沈培宏. 白光 LED 照明技术进展及产业和市场现状[J]. 灯与照明, 2006, 30(2): 46-52.
SHEN Pei-hong. White light LED technology developments, industry and market conditions[J]. Light and Lighting, 2006, 30(2): 46-52.
- [3] 刘洁, 孙家跃, 石春山. 与 LED 匹配的白光发射荧光体的研究进展[J]. 化学通报, 2005(6): 417-424.
LIU Jie, SUN Jia-yue, SHI Chun-shan. The development of the white converter based on LED[J]. Chemistry Online, 2005(6): 417-424.
- [4] Hee S K, Yun C K, Kyeong Y J, et al. Eu-doped barium strontium silicate phosphor particles prepared from spray solution containing NH_4Cl flux by spray pyrolysis[J]. Mater Sci Eng, 2005, B121: 81-85.
- [5] 夏威. 新一代白光 LED 用硅酸盐荧光粉的研制[J]. 光源与照明, 2008(3): 6-7.
XIA Wei. Research of a new generation of silicate phosphor for white LED[J]. Lamps & Lighting, 2008(3): 6-7.
- [6] Park J K, Lim M A, Kim C H, et al. White light-emitting diodes of GaN-based $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ and the luminescent properties[J]. Appl Phys Lett, 2003, 82(5): 683-685.
- [7] Kim J S, Park Y H, Kim S M, et al. Temperature-dependent emission spectra of $\text{M}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ ($\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) phosphors for green and greenish white LEDs[J]. Solid State Communications, 2005, 133: 445-448.
- [8] Lee J H, Kim Y J. Photoluminescent properties of $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ phosphors prepared by solid state reaction method[J]. Materials Science and Engineering B, 2008, 146: 99-102.
- [9] 王细凤, 温嘉琪, 夏威, 等. 发光二极管用荧光粉 $\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ 的制备、发光性能及应用[J]. 硅酸盐学报,

- 2008, 36(8): 1120–1123.
- WANG Xi-feng, WEN Jia-qi, XIA Wei, et al. Preparation, luminescence and application of $\text{Sr}_{2-x}\text{Ba}_x\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ phosphor for light-emitting diodes[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2008, 36(8): 1120–1123.
- [10] Park J K, Choi K J, Park S H, et al. Application of Ba^{2+} , Mg^{2+} co-doped $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}$ yellow phosphor for white-light-emitting diodes[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2005, 152(8): H121–H123.
- [11] 罗昔贤, 曹望和, 孙菲. 硅酸盐基质白光 LED 用宽激发带发光材料研究进展[J]. 科学通报, 2009, 53(9): 1010–1016.
- LUO Xi-xian, CAO Wang-he, SUN Fei. The development of silicate matrix white LED materials with a wide band excitation[J]. Chinese Science Bulletin, 2009, 53(9): 1010–1016.
- [12] 宿新泰, 燕青芝, 葛昌纯. 低温燃烧合成超细陶瓷微粉的最新研究[J]. 化学进展, 2005, 17(3): 431–433.
- SU Xin-tai, YAN Qing-zhi, GE Chang-chun. Recent developments of low-temperature combustion synthesis of ultrafine ceramic powder[J]. Progress in Chemistry, 2005, 17(3): 431–433.
- [13] 张中太, 张俊英. 无机光致发光材料及应用[M]. 北京: 化学工业出版社, 2005: 145–146.
- ZHANG Zhong-tai, ZHANG Jun-ying. Inorganic light emitting materials and applications[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2005: 145–146.
- [14] 李盼来, 杨志平, 王志军, 等. $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ 发光材料的制备及其光谱特性[J]. 物理化学学报, 2008, 24(1): 179–182.
- LI Pan-lai, YANG Zhi-ping, WANG Zhi-jun, et al. Preparation and spectrum characteristics of $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ phosphor[J]. Acta Physico-Chimica Sinica, 2008, 24(1): 179–182.
- [15] QIAO Yan-min, ZHANG Xin-bo, YE Xiao, et al. Photoluminescent properties of $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{3+}$ and $\text{Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+}$ phosphors prepared by solid-state reaction method[J]. Journal of Rare Earths, 2009, 27(2): 323–325.
- [16] Poort S H M, Janssen W, Blasse G. Optical properties of Eu^{2+} activated orthosilicates and orthophosphates[J]. Journal of Alloys and Compounds, 1997, 260(8): 93–97.
- [17] 隋学叶, 刘世权, 程新. 正硅酸乙酯的水解缩聚反应及多孔 SiO_2 粉体的制备[J]. 中国粉体技术, 2006, 11(3): 35–37.
- SUI Xue-ye, LIU Shi-quan, CHENG Xin. Hydrolysis condensation of TEOS and preparations of porous silica powder[J]. China Powder Science and Technology, 2006, 11(3): 35–37.

(编辑 杨幼平)