

# EDTA 络合溶胶-凝胶法合成 YAG:Ce 黄色荧光粉及其性能

李友凤<sup>1,2,3</sup>, 刘国清<sup>1,2</sup>, 漆斌<sup>1,2</sup>, 周虎<sup>1,2</sup>, 姜绮梦<sup>1,2</sup>

- (1. 湖南科技大学 化学化工学院, 湘潭 411201;
2. 湖南科技大学 理论化学与分子模拟省部共建教育部重点实验室, 湘潭 411201;
3. 中南大学 粉末冶金研究院, 长沙 410083)

**摘 要:** 以金属硝酸盐为原料, 乙二胺四乙酸(EDTA)为络合剂, 采用溶胶-凝胶法制备 YAG:Ce 黄色荧光粉, 利用 X 射线衍射仪、扫描电镜、荧光分光光度计等检测方法研究制备过程工艺参数对粉体结构、形貌和发光性能的影响。结果表明: EDTA 络合所得的凝胶经 1000 °C 煅烧就得到纯的钇铝石榴石相(YAG), 其晶相转变温度比柠檬酸(CA)络合剂溶胶-凝胶法的降低约 200 °C, 且所得 YAG:Ce 荧光粉的发光强度随着煅烧温度升高而增大; 凝胶经 1500 °C 高温煅烧所得荧光粉的发光强度比柠檬酸(CA)络合剂的提高 66.2%, 这是由粉体结晶度好、颗粒形貌更规整、呈球形且尺寸更加均匀所致; 在原料液中添加 Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 复合熔盐后, 凝胶经 1500 °C 煅烧后所得荧光粉发光强度比采用非熔盐法所得荧光粉的增大约 10%。

**关键词:** YAG:Ce; EDTA 络合剂; 溶胶-凝胶法; 发光性能

**中图分类号:** TQ031

**文献标志码:** A

## YAG:Ce yellow phosphor synthesized by sol-gel method combining EDTA complexing agent and its properties

LI You-feng<sup>1,2,3</sup>, LIU Guo-qing<sup>1,2</sup>, QI Bin<sup>1,2</sup>, ZHOU Hu<sup>1,2</sup>, JIANG Qi-meng<sup>1,2</sup>

- (1. School of Chemistry and Chemical Engineering, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan 411201, China;
2. Key Laboratory of Theoretical Chemistry and Molecular Simulation, Ministry of Education, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan 411201, China;
3. Powder Metallurgy Research Institute, Central South University, Changsha 410083, China)

**Abstract:** Ce-doped Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (YAG:Ce) yellow phosphors were synthesized by sol-gel method using metal nitrate as raw materials and ethylene diamine tetraacetic acid (EDTA) as complexing agent. The effects of process parameters on the powder structure, morphology and photoluminescence were characterized by X-ray diffractometry, scanning electron microscopy and fluorescence spectrophotometry, respectively. The results show that the pure YAG phase can be prepared by firing gel at 1000 °C for 2 h. Compared with the citric acid (CA) complexing agent sol-gel method, the YAG phase transition temperature of the gel with the EDTA complexing agent sol-gel method can be decreased by about 200 °C. The luminescent intensity of the YAG:Ce phosphors increases as the heat temperature increasing because of phosphor with good crystalline and more regular spherical particle. When the gel is sintered at 1500 °C, the luminescent intensity of the phosphor improves by 66.2% than that of phosphor with citric acid complexing agent, and the luminescent intensity of the phosphor with Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> composite molten salt in reaction liquid can be increased by 10% than that prepared without molten salt method.

**Key words:** YAG:Ce; EDTA complexing agent; sol-gel method; luminescence properties

**基金项目:** 国家自然科学基金资助项目(21006022); 湖南省自然科学基金资助项目(14JJ4043)

**收稿日期:** 2013-07-30; **修订日期:** 2013-11-20

**通信作者:** 李友凤, 讲师, 博士; 电话: 18711338226; E-mail: liyoufeng2005@sina.com

荧光粉是一种无机光致发光材料, 现已成为信息显示、照明光源和光电器件等领域中的支撑材料。随着 21 世纪的新一代光源——半导体白光 LED(发光二极管)等新型照明器件和等离子体平板显示器的迅速发展, 对荧光粉的应用性能, 提出了越来越高的要求。所以研究荧光粉的制备技术, 进一步提升粉体的性能, 是荧光粉研究领域重要内容之一<sup>[1-3]</sup>。

近年来, 国内外学者围绕着微纳米级荧光粉的制备技术进行了大量的研究工作, 其主要方法有高温固相法、共沉淀法、水热法、溶胶-凝胶法、燃烧法<sup>[4-8]</sup>等。固相法需较高的制备温度, 且产品颗粒较粗, 硬度较大, 不易得到单相结构, 但其仍是目前工业上制备荧光粉的主要方法<sup>[9]</sup>。共沉淀等液相法具有生产成本低、易大批量生产和高效率等优点而逐渐应用于工业化生产<sup>[10-11]</sup>, 但是液相法中颗粒间容易产生团聚现象。已有研究证明在反应溶液中添加有机物络合剂, 络合剂与原料液中的阳离子率先发生络合作用, 形成三维网络结构的络合物凝胶, 凝胶再经低温煅烧后获得高纯的、分散性良好的粉体。MAIA 等<sup>[12]</sup>采用柠檬酸络合溶胶-凝胶法制备出了约 20 纳米的  $\text{MgAl}_2\text{O}_4:\text{Eu,Dy}$  荧光粉, 发现煅烧温度为 600 °C 时样品呈非晶态, 700 °C 以上就出现了  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  的尖晶石晶相, 比固相法 1300~1500 °C 低得多。孙海鹰等<sup>[13]</sup>以丙二酸为络合剂, 采用溶胶-凝胶法于 1200 °C 合成粒径为 0.3~1.0  $\mu\text{m}$  的  $\text{YAG}:\text{Ce,Gd}$  球形荧光粉, 且荧光粉的发射光谱发生了红移。溶胶-凝胶法具有反应活性高、合成温度低、各组分混合均匀、所得粉体粒径小且分布窄等特点而受到广泛重视, 通常溶胶-凝胶法以柠檬酸、二元酸等为络合剂, 以 EDTA 为络合剂的主要是采用喷雾热解法或燃烧法制备荧光粉体, 而 EDTA 络合溶胶-凝胶高温直接煅烧方法未见报道<sup>[14]</sup>。

就应用广泛的液相法制备微纳米荧光粉过程而言, 主要是采用化学法先合成前驱体, 然后经过高温煅烧获得荧光粉产品。高温煅烧过程大多采用直接煅烧, 主要是考察温度、时间和气氛等因素的影响。除了直接煅烧以外, 也有在煅烧过程中添加助溶剂和电荷补偿剂的研究。JIAO 等<sup>[15]</sup>研究发现采用  $\text{LiF}$  助溶剂-凝胶燃烧法, 在 4% $\text{LiF}$  最佳用量的条件下, 生成 YAG 相的温度可降低至 540 °C 附近。陈哲等<sup>[16]</sup>研究助溶剂  $\text{H}_3\text{BO}_3$  对  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}:\text{Eu}(\text{BAM})$  发光性能的影响, 结果表明: 助溶剂有利于产物的晶化, 所获得的 BAM 颗粒形貌更规整, 呈球形且尺寸更加均匀。本实验中以 EDTA 为络合剂, 采用溶胶-凝胶法制备前驱体  $\text{YAG}:\text{Ce}$  凝胶, 然后进行高温煅烧, 以期获得高亮度、近球形的亚微米级  $\text{YAG}:\text{Ce}$  黄色荧光粉, 并比较

了 EDTA 与 CA 络合效果, 以及在原料液中添加  $\text{Na}_2\text{SO}_4\text{-K}_2\text{SO}_4$  复合熔盐对粉体发光性能的影响。

## 1 实验

### 1.1 样品的制备

以  $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 、EDTA 和硝酸等为主要原料, 采用 EDTA 络合溶胶-凝胶法制备  $\text{YAG}:\text{Ce}$  前驱体粉末。首先将高纯的  $\text{Y}_2\text{O}_3$  溶解于硝酸溶液中, 在水浴加热的条件下蒸发多余的硝酸得  $\text{Y}_2(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  晶体。按化学计量比  $\text{Y}_{2.95}\text{Ce}_{0.05}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  称取相应量的  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  和  $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 用蒸馏水配制成澄清溶液, 使  $\text{Y}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$  和  $\text{Ce}^{3+}$  3 种金属阳离子总浓度为 0.1 mol/L; 配置碳酸氢氨( $\text{NH}_4\text{HCO}_3$ )碱性溶液, 浓度为 1.5 mol/L。

在阳离子溶液中添加络合剂 EDTA, EDTA 用量按摩尔比(EDTA 与金属离子的摩尔比为 1:1)配比, 滴加碳酸氢氨溶液调节 pH 值至 8.0 左右, 于 80 °C 水浴条件下搅拌至无色溶胶, 将无色溶胶于 105 °C 干燥箱保温干燥变成白色凝胶, 凝胶在 1000~1500 °C 高温下焙烧 2 h, 得到  $\text{YAG}:\text{Ce}$  黄色粉末。

### 1.2 实验检测

用德国布鲁克 AXS 有限公司的 D8 Advance 型 X 射线衍射仪(X-ray diffraction, XRD)分析不同条件下煅烧所得粉体的晶相结构。用日本的 JEOL-6360LV 型扫描电镜(Scanning electron microscope, SEM)观察粉体形貌并估计其颗粒大小; 用美国制造的 F2500 型荧光光谱仪(Fluorescence spectrometer, FS)测试  $\text{YAG}:\text{Ce}$  粉体的发光性能。

## 2 结果与分析

### 2.1 $\text{YAG}:\text{Ce}$ 荧光粉的晶相结构

PAN 等<sup>[17]</sup>比较研究了  $\text{YAG}:\text{Ce}$  荧光粉制备的固相法、共沉淀法、溶胶凝胶法和尿素燃烧法几种不同的方法。结果表明: 采用固相法在 1500 °C 才能得到 YAG 相, 较其他 3 种方法要高出约 500 °C, 并且固相法很容易出现 YAP 和 YAM 等中间相产物; 溶胶-凝胶等液相法所需的温度则低得多, 且不易出现中间杂质相。图 1(a)所示为干凝胶经过 1000~1500 °C 煅烧后所得粉体的 XRD 谱。从图 1(a)可以看出: 以 EDTA 为络合剂, 采用溶胶-凝胶法合成的  $\text{YAG}:\text{Ce}$  前驱体在

1000 °C 煅烧后, 粉体为纯的 YAG 相, 随着煅烧温度的升高, 粉体的结晶度提高, 衍射峰强度增大。这说明温度低于 1000 °C 时, 粉体全部转换为立方相的 YAG,  $\text{Ce}^{3+}$  离子半径与  $\text{Y}^{3+}$  离子半径很接近,  $\text{Ce}^{3+}$  在晶格中取代了  $\text{Y}^{3+}$  的位置, 且不影响其晶体结构<sup>[18]</sup>, 所以, YAG 中添加稀土 Ce 后仍然保持了原来的立方结构, 经检测其晶型和标准的 JCPDS#33-0040 图谱一致。

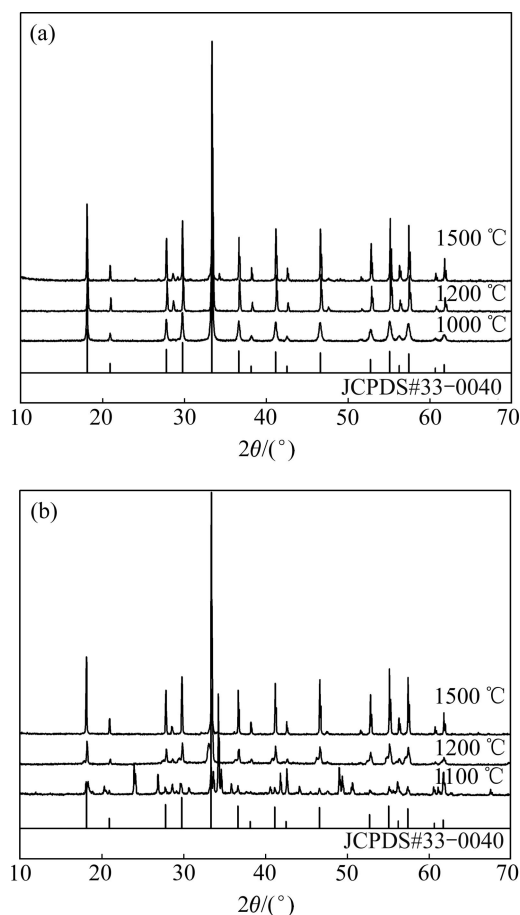


图1 络合剂和温度对 YAG:Ce 粉体的 XRD 谱影响

Fig. 1 Effects of complexing agent and temperature on XRD patterns of YAG:Ce phosphor: (a) EDTA; (b) CA

溶胶-凝胶法合成 YAG:Ce 前驱体过程中, EDTA 和  $\text{Y}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$  和  $\text{Ce}^{3+}$  形成稳定的络合物(其分子结构如图 2(a), M 代表金属阳离子), 使这几种阳离子达到分子水平上的均匀混合, 减少了其结合成相的扩散路径。同时, EDTA 有机物受热分解释放出来的热量进一步促进了  $\text{Y}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$  和  $\text{Ce}^{3+}$  扩散, 这样有利于在较低的热处理温度下达到共析, 直接形成 YAG 相。另外, 络合剂对溶胶-凝胶的形成有一定影响, 一旦溶胶转变为凝胶, 凝胶的物理和化学性质将影响最终粉体的性能。

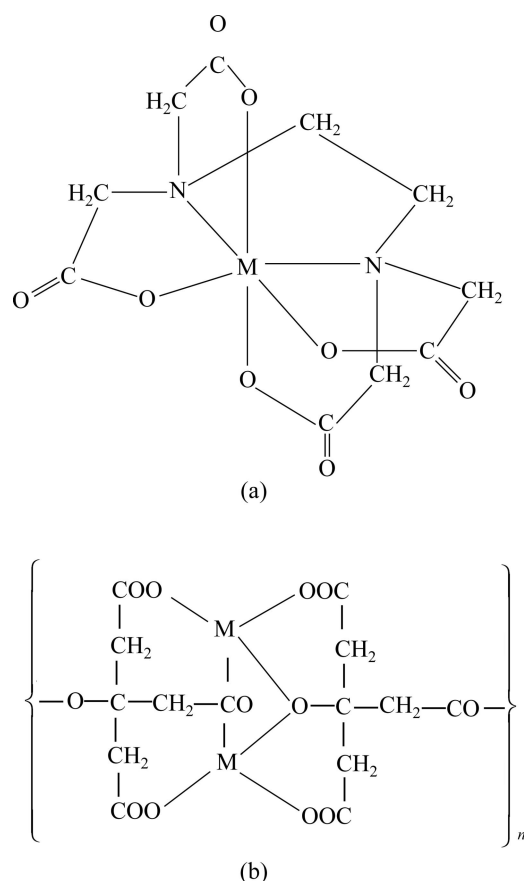


图2 络合剂与金属阳离子形成配合物的结构示意图

Fig. 2 Molecular structural formula of complex and metal cations: (a) EDTA-M; (b) CA-M

实验发现, 在混合金属阳离子溶液中加入 CA 有机络合剂时, 其 YAG 晶相转变为 1200 °C, 比相同条件下 EDTA 有机络合剂高出约 200 °C, 其 XRD 分析结果见图 1(b)。这可能是由于 CA 是一种多齿配体, 一个分子中有 3 个羧基和 1 个羟基, 与三价阳离子生成配位络合物随着浓度的增大交联缩聚成有机大分子(其结构如图 2(b)), 将金属阳离子均匀、分散地固定在有机三维之中, 其稳定性比 EDTA 络合物的要好, 所以其 YAG 晶相转变要高。

## 2.2 YAG:Ce 荧光粉的形貌特征

图 3 所示为不同温度下煅烧得到 YAG:Ce 荧光粉的 SEM 像。从图 3 可以看出, 样品具有较好的分散性, 且随着温度的升高, 颗粒尺寸随之增大, 结晶度也随之提高, 这与 XRD 分析结果一致。但是当温度为 1500 °C 高温时, 颗粒间有粘附在一起的团聚现象。根据 SEM 像, 用 Nano Mearsurer1.2 软件计算产品尺寸范围约为 0.26~0.67  $\mu\text{m}$ 。由于  $\text{Al}^{3+}$ 、 $\text{Y}^{3+}$  和  $\text{Ce}^{3+}$  离子的氢氧化物沉淀和碳酸盐沉淀的离子溶度积差别较

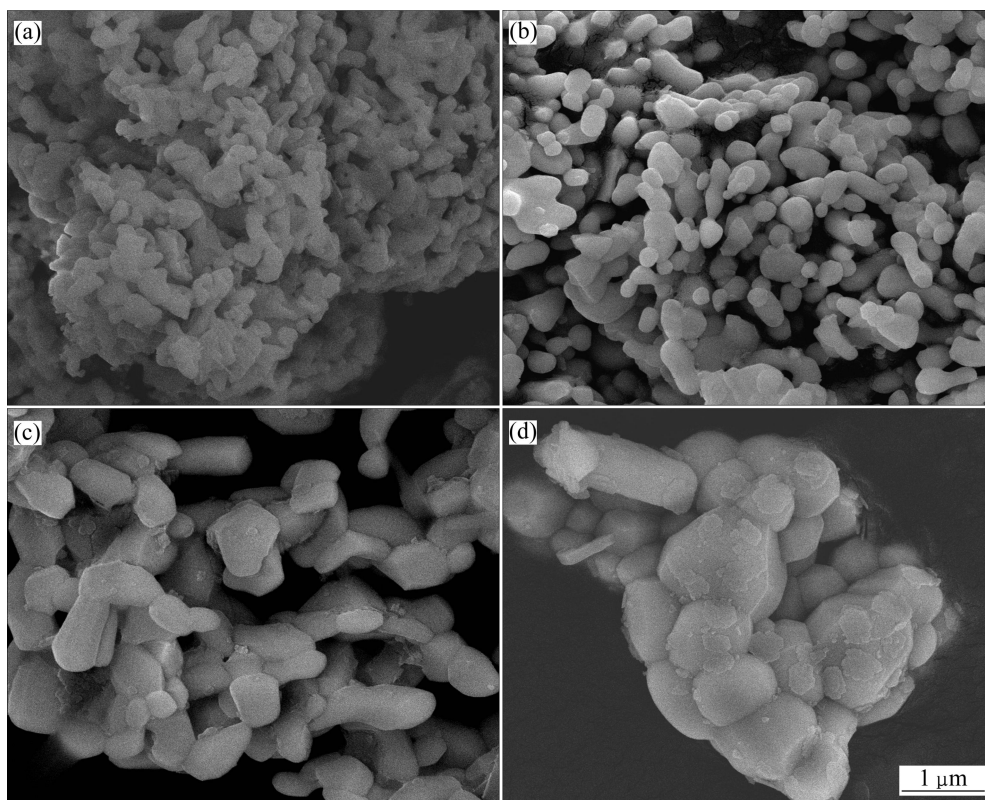


图 3 不同煅烧温度所得 YAG:Ce 粉体的 SEM 像

Fig. 3 SEM images of YAG:Ce powder sintered at different temperatures: (a) 1000 °C; (b) 1100 °C; (c) 1300 °C; (d) 1500 °C

大, 其在溶液中形成沉淀时所需周围离子浓度大小及溶液酸碱度不同, 沉淀速度也相差较大。VROLIJK 等<sup>[19]</sup>研究发现, 只有当溶液的 pH 值大于 7.0 时,  $Y^{3+}$  离子和  $Al^{3+}$  才开始同时沉淀, 并且此时  $Y^{3+}$  的沉淀物为碳酸钇,  $Al^{3+}$  的沉淀物为氢氧化铝, 所以得到的先驱物化学组成不均匀。在反应原料液中加入 EDTA, EDTA 就会与金属阳离子形成稳定常数  $\log K_{MY}$  大的络合物, 可以大大减少溶液中  $Al^{3+}$ 、 $Y^{3+}$  和  $Ce^{3+}$  自由金属离子的浓度, 且在溶胶浓缩成凝胶过程中, 随着溶液粘度的迅速增加, EDTA 能确保金属离子在溶液中均匀分布, 有效地防止了金属的偏析, 使金属离子在凝胶中处于分子水平的均匀分布状态。同时, EDTA 有机物高温燃烧反应过程中释放出大量的  $CO_2$ 、 $H_2O$  等气体, 有机网络结构及气体的产生可以大大减少粉体间的团聚, 因而获得分散性好、团聚少、形状较为规则的超细粉体。

### 2.3 YAG:Ce 荧光粉的发光性能

荧光粉的发射光谱是用 470 nm 的可见光激发测定不同波长下的发光强度。图 4 所示为不同煅烧温度

下 YAG:Ce 荧光粉的发射光谱, 其最强发射峰位于 527 nm 左右, 为可见光区的宽谱, 属于  $Ce^{3+}$  的  $5d \rightarrow 4f$  的特征跃迁发射。从图 4 可以看出, 随着煅烧温度的升高, 荧光粉的发射强度增大。这是因为随着煅烧温

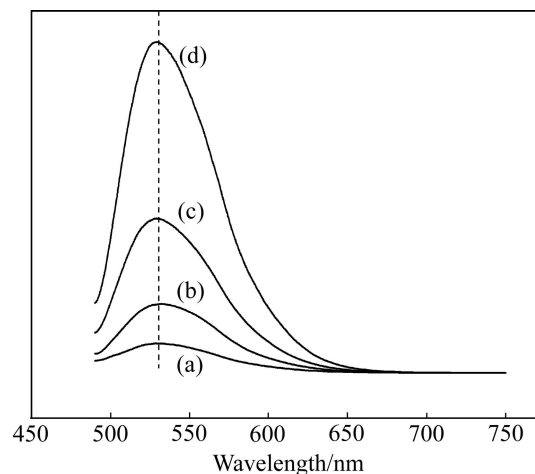


图 4 不同温度下 YAG:Ce 荧光粉的发射光谱

Fig. 4 Emission spectra of YAG:Ce phosphors at different sintering temperatures: (a) 1100 °C; (b) 1200 °C; (c) 1300 °C; (d) 1500 °C

度的升高, 粉体的粒径和结晶度也随之增大(如图 3 所示)。颗粒的结晶度好, 其发光效率高, 而且颗粒粒径越大, 对激发光散射越小, 这样就更有效地吸收激发光, 所以其发射光强度增大。

图 5 所示为不同工艺条件下所得 YAG:Ce 荧光粉发射谱。其中图 5(a)是以 CA 为络合剂所得凝胶于 1500 °C 高温煅烧后荧光粉的发射光谱; 图 5(b)所示为以 EDTA 为络合剂所得凝胶于 1500 °C 高温煅烧荧光粉的发射光谱; 图 5(c)所示为以 EDTA 为络合剂, 同时在反应原料液中添加  $\text{Na}_2\text{SO}_4\text{-K}_2\text{SO}_4$  复合熔盐后所得凝胶于 1500 °C 高温煅烧荧光粉的发射光谱。从图 5 可发现, 经 1500 °C 高温所得荧光粉的发光强度 EDTA 络合的比 CA 络合的提高了 66.2%; 以 EDTA 为络合剂时, 在原料液中添加  $\text{Na}_2\text{SO}_4\text{-K}_2\text{SO}_4$  复合熔盐后, 荧光粉发光强度增大了约 10%。

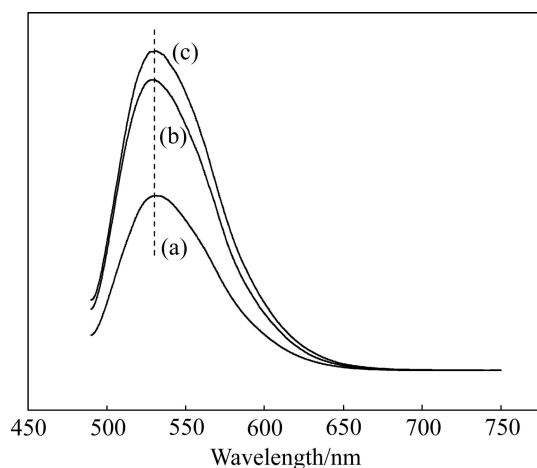


图 5 不同工艺条件对 YAG:Ce 荧光粉的发射强度的影响

**Fig. 5** Effect of different process conditions emission intensity of YAG:Ce phosphors sintered at 1500 °C: (a) CA; (b) EDTA; (c) EDTA+molten salt

荧光粉发光性能的好坏不仅取决于产品的纯度, 而且和产品的形貌、尺寸及其分布等有关, 不同工艺条件下所得粉体的形貌、粒度大小及其分布不同, 所以其发光性能差别较大。图 6 所示为不同工艺条件下经 1500 °C 煅烧 YAG:Ce 荧光粉的 SEM 像。从图 6 可以看出, 以 CA 为络合剂所得荧光粉颗粒(见图 6(a))比 EDTA 络合剂(见图 6(b))的要小, 且颗粒间呈现出网络结构; 而当在 EDTA 络合剂溶液中添加  $\text{Na}_2\text{SO}_4\text{-K}_2\text{SO}_4$  复合熔盐后, 所得荧光粉颗粒要大, 形貌为近球形, 颗粒表面光滑, 并且其颗粒间的分散性(见图 6(c))比 EDTA 络合剂(见图 6(b))的要好。当以

CA 为络合剂时, 所形成的络合物为大分子高聚物结构, 其稳定性要高些, 在高温煅烧过程中起到分散效果要好, 因此, 所得颗粒要小。在高温煅烧过程中,  $\text{Na}_2\text{SO}_4\text{-K}_2\text{SO}_4$  熔盐可提供晶体材料生长所需的液态

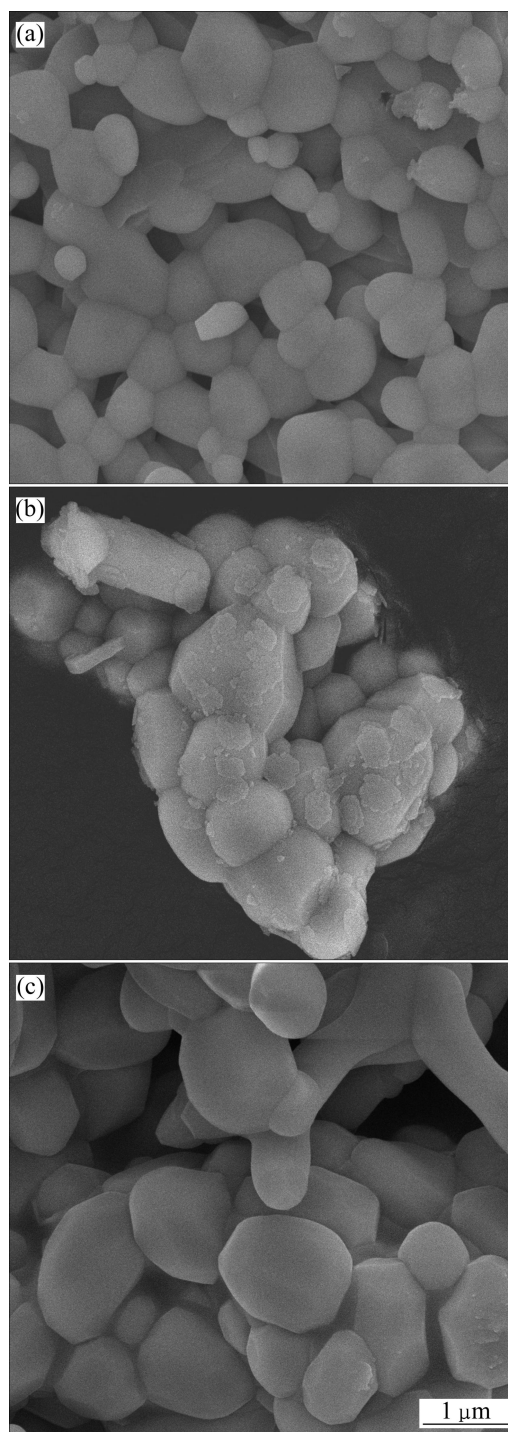


图 6 不同工艺条件下经 1500 °C 煅烧 YAG:Ce 荧光粉的 SEM 像

**Fig. 6** SEM images of YAG:Ce phosphors sintered at 1500 °C under different process conditions: (a) CA; (b) EDTA; (c) EDTA+molten salt

环境, 促进其结晶长大; 同时, 熔融状态的熔盐粘度低, 作为介质流动性好, 有较高的离子迁移和扩散速度, 有助于反应物离子在液态环境中运动, 从而加快反应速度, 使得  $\text{Ce}^{3+}$  在 YAG 中掺杂得更均匀, 减少了因局部  $\text{Ce}^{3+}$  浓度过大引起浓度猝灭的几率<sup>[20]</sup>, 从而提高了 YAG:Ce 荧光粉的分散性和其发光强度。

### 3 结论

1) 采用 EDTA 溶胶-凝胶法合成 YAG:Ce 干凝胶, 经 1000 °C 煅烧后得到纯相的黄色 YAG:Ce 粉体, 其粒径大小约为 0.3  $\mu\text{m}$ , 比传统固相反应法降低约 500 °C, 比 CA 络合剂溶胶-凝胶法降低约 200 °C。

2) YAG:Ce 荧光粉的发光强度随着煅烧温度的升高而增大, SEM 照片显示, 随着温度升高, 颗粒尺寸随之增大, 结晶度也随之提高, 颗粒形貌趋近于球形。

3) 经 1500 °C 高温所得荧光粉的发光强度, EDTA 络合剂的比 CA 络合剂的提高 66.2%; 在原料液中添加  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ - $\text{K}_2\text{SO}_4$  复合熔盐后, 荧光粉发光强度增大约 10%。

### REFERENCES

- [1] 张中太, 张俊英. 无机光致发光材料及应用[M]. 2 版. 北京: 化学工业出版社, 2011: 1-10.  
ZHANG Zhon-gtai, ZHANG Jun-ying. Inorganic luminescent materials and its application[M]. 2nd ed. Beijing: Chemical Industry Press, 2011: 1-10.
- [2] ZHOU Jun, PAN Yu-bai, LI Jiang, ZHANG Wen-xin, KOU Hua-min, LIU Wen-bin, GUO Jing-kun. Fabrication of YAG transparent ceramics using slip casting with ethanol[J]. Journal of Inorganic Materials, 2011, 26(3): 254-256.
- [3] GE Li-qi, JI Jian-yu. Multilayered hybrid nanofibers as extreme ultraviolet target irradiated with low energy Nd:YAG laser[J]. Asian Journal of Chemistry, 2011, 23(5): 2057-2060.
- [4] LI Chang-qing, ZUO Hong-bo, ZHANG Ming-fu, HAN Jie-cai, MENG Song-he. Fabrication of transparent YAG ceramics by traditional solid-state-reaction method[J]. Transaction of Nonferrous Metals Society of China, 2007, 17(1): 148-153.
- [5] CHIANG C C, TSAI M S, HSIAO C S, HON M H. Synthesis of YAG:Ce phosphor via different aluminum sources and precipitation processes[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2006, 416(1/2): 265-269.
- [6] BASAVALINGU B, GIRISH H N, BYRAPPA K, SOGA K H. Hydrothermal synthesis and characterization of orthorhombic yttrium aluminum perovskites[J]. Materials Chemistry and Physics, 2008, 112(3): 723-725.
- [7] KATELNIKOVAS A, VITTA P, POBEDINSKAS P, TAMULAITIS G, ZUKAUSKAS A, JORGENSEN J E, KAREIVA A. Photoluminescence in sol-gel derived YAG: Ce phosphors[J]. Journal of Crystal Growth, 2007, 304(2): 361-368.
- [8] YANG Zhi-ping, LI Xu, YANG Yong, LI Xing-min. The influence of different conditions on the luminescent properties of YAG:Ce phosphor formed by combustion[J]. Journal of Luminescence, 2007, 122/123: 707-709.
- [9] 王 飞, 刘大春, 杨 斌, 刘利军, 戴永年. 掺杂离子对  $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Eu}^{3+}$  磷光体结构和发光性能的影响[J]. 中国有色金属学报, 2012, 22(4): 1107-1112.  
WANG FEI, LIU Da-chun, YANG Bin, LIU LI-jun, DAI Yong-nian. Influence of doped ions on crystal structure and luminescent properties of  $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{:Eu}^{3+}$ [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2012, 22(4): 1107-1112.
- [10] ZHANG Yong-ming, YU Hong-ming. Synthesis of YAG by the co-precipitation method[J]. Ceramics International, 2009, 35(5): 2077-2081.
- [11] LEE M H, YI KANG, MYUNG S T. Synthetic optimization of  $\text{Li}[\text{Ni}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}]\text{O}_2$  via co-precipitation[J]. Electrochimica Acta, 2004, 50(4): 939-948.
- [12] MAIA A S, STEFANI R, KODAIRA C A. Luminescent nanoparticles of  $\text{MgAl}_2\text{O}_4\text{:Eu,Dy}$  prepared by citrate sol-gel method[J]. Optical Materials, 2008, 31(2): 440-444.
- [13] 孙海鹰, 张希艳, 王能利, 米晓云, 刘全生. 丙二酸溶胶-凝胶法合成亚微米级 YAG:Ce,Gd 黄色荧光粉[J]. 硅酸盐通报, 2010, 29(1): 94-97.  
SUN Hai-ying, ZHANG Xi-yan, WANG Neng-li, MI Xiao-yun, LIU Quan-sheng. Synthesis of submicron-sized YAG:Ce,Gd yellow phosphor by malonic acid sol-gel method[J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2010, 29(1): 94-97.
- [14] XIANG W, TANG Y, WANG Y Y, ZHONG B H, FANG W M, LIU H, GUO X D. Influence of pH value and chelating reagent on performance of  $\text{Li}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)_3$  cathode material[J]. Transaction of Nonferrous Metals Society of China, 2013, 23(5): 1395-1402.
- [15] JIAO Huan, MA Qiang, HE Li-long, LIU Zhen, WU Qiao-li. Low temperature synthesis of YAG:Ce phosphor by LiF assisted sol-gel combustion method[J]. Powder technology, 2010, 198(2): 229-232.
- [16] 陈 哲, 严有为, 尹 懿, 林谋有, 刘德辉, 张晨曙. 助熔剂对纳米  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}\text{:Eu}^{2+}$  发光性能影响的机理[J]. 硅酸盐学报, 2008, 36(9): 1267-1271.  
CHEN Zhe, YAN You-wei, YIN Yi, LIN Mou-you, LIU Dei-hui, ZHANG Chen-shu. Mechanisms of effects of flux action on luminescence properties of  $\text{BaMgAl}_{10}\text{O}_{17}\text{:Eu}^{2+}$  phosphor[J].

- Journal of the Chinese Ceramic Society, 2008, 36(9): 1267-1271.
- [17] PAN Yue-xiao, WU Ming-mei, SU Qiang. Comparative investigation on synthesis and photoluminescence of YAG:Ce phosphor[J]. Materials Science and Engineering B, 2004, 106(3): 251-256.
- [18] 龙 震, 陆田野, 宋浩亮, 胡章贵. 共沉淀-流变相法制备 YAG:Ce [J]. 中国稀土学报, 2010, 28(4): 399-402.
- LONG Zhen, LU Tian-ye, SONG Hao-liang, HU Zhang-gui. Synthesis of YAG:Ce phosphor by coprecipitation-rheological phase[J]. Journal of the Chinese Rare Earth Society, 2010, 28(4): 399-402.
- [19] VROLIJK J W G A, WILLEMS J W M M, METSELAARA R. Coprecipitation of yttrium and aluminum hydroxide for preparation of yttrium aluminum garnet[J]. Journal of the European Ceramic Society, 1990, 6(1): 47-51.
- [20] 李友凤, 叶红齐, 何显达. 撞击流共沉淀-熔盐煅烧法制备 YAG:Ce 荧光粉及其性能[J]. 硅酸盐学报, 2011, 39(9): 1400-1405.
- LI You-feng, YE Hong-qi, HE Xian-da. Preparation of YAG:Ce phosphor by impinging streams homogeneous precipitation-molten salt method and its properties[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2011, 39(9): 1400-1405.

(编辑 李艳红)