文章编号：1000-7032(2018)07-0909-06

溶胶-凝胶法制备 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 红色荧光粉

周　鹤[1,2]，周志勇[3]，曾　群[1,3*]，姚春凤[4]，刘　磊[1]

（1. 华南师范大学信息光电子科技学院 广东省微纳光子功能材料与器件重点实验室，广东 广州　510006；
2. 湖北大学物理与电子科学学院 铁电压电材料与器件湖北省重点实验室，湖北 武汉　430062；
3. 中国科学院 无机功能材料与器件重点实验室，上海　200050；4. 华南师范大学 实验中心，广东 广州　510006）

摘要： 采用溶胶-凝胶法制备 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 红色荧光粉，讨论了煅烧温度、煅烧时间以及 Eu^{3+} 掺杂浓度对样品发光性能的影响。通过 XRD、荧光光谱分别对样品的性能进行表征，结果表明：样品的晶相结构为“M-相(M-phase)”。在 466 nm 蓝光激发下，合成的荧光粉具有橙光(593 nm)和红光(612 nm)发射。发光强度随着煅烧温度的升高先增大后减小，最佳的煅烧温度为 850 ℃。同时，随着煅烧时间的增加，发光强度先增大后减小，最佳煅烧时间为 6 h。当 Eu_2O_3 掺入质量分数为 2.5% 时，样品的发光强度达到最大。$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 红色荧光粉在白光 LED 的应用中具有潜力。

关　键　词： 溶胶-凝胶法；Eu^{3+} 掺杂；红色荧光粉；发射光谱

中图分类号： O482.31　　**文献标识码：** A　　**DOI：** 10.3788/fgxb20183907.0909

Preparation of Eu^{3+} Doping $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$ Red Phosphor by Sol-gel Method

ZHOU He[1,2], ZHOU Zhi-yong[3], ZENG Qun[1,3*], YAO Chun-feng[4], LIU Lei[1]

(1. *Guangdong Provincial Key Laboratory of Nanophotonic Functional Materials and Devices, School of Information and Photoelectronic Science and Engineering, South China Normal University, Guangzhou* 510006, *China*;
2. *Hubei Key Laboratory of Ferro & Piezoelectric Materials and Devices, Faculty of Physics & Electronic Science, Hubei University, Wuhan* 430062, *China*;
3. *Key Laboratory of Inorganic Funcitional Materials and Devices, Chinese Academy of Sciences, Shanghai* 200050, *China*;
4. *Research Resources Center, South China Normal University, Guangzhou* 510006, *China*)
* *Corresponding Author, E-mail: qunzeng@scnu.edu.cn*

Abstract: $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ red phosphor was synthesized by sol-gel method. The influences of the sintering temperature, the sintering time and the Eu^{3+} doping concentration on the luminous properties of the samples were discussed. The properties of the samples were characterized by X-ray diffraction (XRD) and photoluminescence spectroscopy, respectively. The results show that the samples are consist of “M- phase”. Under the excitation of 466 nm, the orange emission at 593 nm and the red emission at 612 nm can be observed. The emission intensity increases with the increasing of the sintering temperature firstly and then decreases. The optimum sintering temperature is about 850 ℃. Moreover, the emission intensity increases with the increasing of the sintering time firstly and then decreases. The relatively high emission intensity of the sample can be obtained when the sintering time is 6 h. In addition, the optimal doping mass fraction of Eu_2O_3 is about 2.5%. Therefore, the red phosphor has potential application in the white-LED field.

Key words: sol-gel method; Eu-doped; red phosphor; emission spectrum

收稿日期： 2017-10-25；**修订日期：** 2017-12-24

基金项目： 2015 年广州市珠江科技新星项目(201506010001)；中国科学院无机功能材料与器件重点实验室开放课题(KLIFMD-2015-03)；华南师范大学研究生科研创新基金(2016lkxm63)；铁电压电材料与器件湖北省重点实验室开放课题基金(201606)资助项目
Supported by 2015 Annual Pearl River Nova Program of Guangzhou(201506010001); Open Project Program of Key Laboratory of Inorganic Function Material and Device, Chinese Academy of Sciences(KLIFMD-2015-03); Scientific Research Foundation of Graduate School of South China Normal University(2016lkxm63); Hubei Key Laboratory of Ferro and Piezoelectric Materials and Devices(201606)

1 引 言

自1996年第一支白光LED问世以来,白光LED因为具有绿色、高效、节能等优点,被认为是继白炽灯、荧光灯和高压气体放电灯后的第四代照明光源[1-2]。它具有使用寿命长、发光效率高、节能、显色指数高、环保的优点,在各个领域均得到了广泛的应用,人们也渐渐加大了对白光LED的研究力度[3-5]。就白光LED技术而言,目前有多种途径实现,其中近紫外"LED芯片+红绿蓝三色荧光粉"的研究最为活跃。低温共烧陶瓷(Low temperature co-fired ceramic,LTCC)作为发光材料也已被应用在半导体照明领域[6]。Eu^{3+}具有4f电子层结构,符合跃迁发光的要求,其高效率的红光发光性能,在彩色电视、显示器和三基色荧光粉等领域被广泛应用[7-8],掺杂到LTCC材料中,可制备出新型稀土发光介质材料。

锂铌钛体系材料是一种非常重要的微波介质陶瓷材料,它烧结温度低(1 100 ℃),品质因数高,频率温度系数小,且在一定范围内正负可调,介电常数可系列化(20~80之间)。2001年,Borisevich等[9]首次报道了"M-相(M-phase,即$Li_{1+x-y}Nb_{1-x-3y}Ti_{x+4y}O_3$固溶体体系)"陶瓷的晶体结构和优异的微波介电性能。曾群等[10]对具有"M-相"结构的$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$加入1%质量分数的$B_2O_3$,在880 ℃烧结同样获得了良好的微波介电性能。此外,国内外学者对"M-相"$Li_{1+x-y}Nb_{1-x-3y}Ti_{x+4y}O_3$进行了大量研究[11-12]。近几年,Hayashi等[13-14]报道指出,稀土掺杂的"M-相"$Li_{1+x-y}Nb_{1-x-3y}Ti_{x+4y}O_3$粉体材料具有层状结构,且具有良好的发光性能,可作为一种新型的荧光剂应用。王飞等[15]用固相法制备了Eu^{3+}掺杂的$5Li_2O$-$1Nb_2O_5$-$5TiO_2$(LNT)陶瓷材料,在400 nm近紫外光激发下,有较强的红光(615 nm)发射。由此可见,锂铌钛体系材料除了具有微波介电性能,也具有良好的发光性能。

溶胶-凝胶法(sol-gel)采用溶液反应的步骤,反应物能够在分子水平上混合均匀而且组成精确,制备出的样品均匀而且纯度较高,各种无机物或者复合材料可以利用溶胶-凝胶法在相对较低的温度下制备。2014年,何晓林等[16]采用溶胶-凝胶法合成Li_2ZnSiO_4:Sm^{3+}红色荧光粉,并对其发光性能进行了研究;2015年,曹文强等[17]采用溶胶-凝胶法合成$AlPO_4$:xEu^{3+},分析了它的结构和发光性能;2016年,董其铮等[18]用溶胶-凝胶法将Gd^{3+}和P^{3+}掺杂到YVO_4:Eu^{3+}中,得到了色纯度更好的纳米红色荧光粉。到目前为止,尚无关于采用溶胶-凝胶法合成$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$:$Eu^{3+}$红色荧光粉的研究报道。本文采用$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$(LNT)为基质,$Eu^{3+}$为激活剂,对材料的结构和荧光性能进行了分析。

2 实 验

实验以柠檬酸为络合剂,采用溶胶-凝胶法制备$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$:$Eu^{3+}$红色荧光粉,所用试剂为硝酸锂($LiNO_3$,AR)、五氧化二铌($Nb_2O_5$,99.99%)、酞酸丁酯($Ti(C_4H_9O)_4$,AR)、氧化铕($Eu_2O_3$,99.99%)、一水合柠檬酸($C_6H_8O_7 \cdot H_2O$,AR)、无水乙醇($CH_3CH_2OH$,AR)、氢氟酸(HF,AR)、硝酸($HNO_3$,AR)、乙二醇($C_2H_6O_2$,AR)、氨水($NH_3$,AR)。首先按照化学计量比计算并称取相应的试剂,将Nb_2O_5加到氢氟酸(HF)中,于80 ℃水浴8 h,溶解,得到澄清透明溶液。将$LiNO_3$溶于水,$Ti(C_4H_9O)_4$溶于乙醇,按柠檬酸与溶液金属离子摩尔比为3:1,分别向Nb_2O_5的HF溶液、$LiNO_3$的水溶液和$Ti(C_4H_9O)_4$乙醇溶液中加入配置好的柠檬酸溶液。将Eu_2O_3加到硝酸中溶解,得到澄清透明溶液。将上述溶液混合后加入乙二醇,用氨水调节pH=5~6,于80 ℃恒温搅拌8 h,得到透明稳定的凝胶。凝胶在130 ℃烘箱中干燥48 h得到黑色、多孔的海绵状干凝胶,再将干凝胶研磨成粉末,并置于电阻炉中以2 ℃/min的升温速率煅烧至450 ℃,保温4 h,再以5 ℃/min的升温速率煅烧至更高温度,保温一定时间,得到$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$:$Eu^{3+}$荧光粉。

实验室中所有样品的物相分析均采用日本Rigaku公司的D/Max-2550 V型X射线衍射仪,主要参数为:扫描范围:10°~80°,扫描速率为5(°)/min。采用日立F-4500荧光光谱仪测试样品的激发光谱和发射光谱,激发光源是氙灯,分辨率为1 nm,所有的测试均在室温下完成。

3 结果与讨论

3.1 物相分析

图1、2、3分别为不同温度、不同煅烧时间、不同Eu^{3+}掺杂浓度合成的$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$:$Eu^{3+}$荧

光粉的 X 射线衍射谱，对比标准粉末衍射卡片，发现样品主要晶相为具有斜方晶系类钙钛矿结构的 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$（JCPDS No. 00-057-0073），即“M-相”固溶体。图 1 中，样品在 750 ℃时即已生成完整的“M-相”，温度升高，结构并未发生改变。

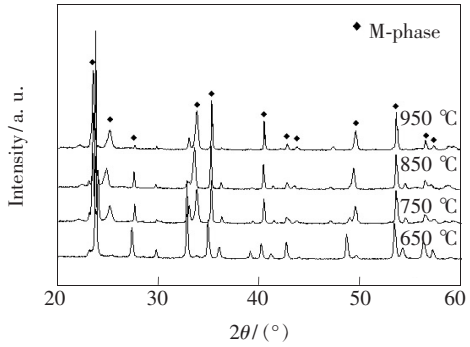

图 1　不同煅烧温度合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 荧光粉的 X 射线衍射谱

Fig. 1　XRD patterns of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ phosphor sintered at different temperatures

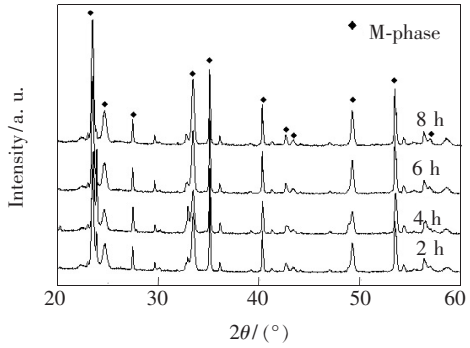

图 2　不同煅烧时间合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 荧光粉的 X 射线衍射谱

Fig. 2　XRD patterns of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ phosphor sintered for different hours

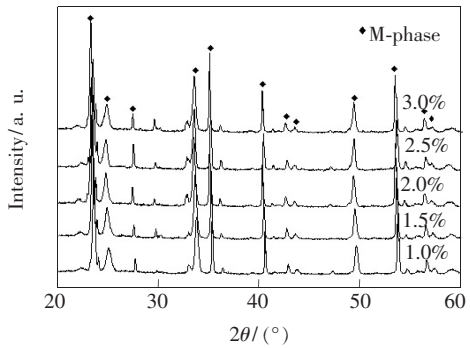

图 3　不同 Eu^{3+} 掺杂浓度合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 荧光粉的 X 射线衍射谱

Fig. 3　XRD patterns of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ phosphor of different Eu^{3+} doping concentrations

图 2 中，样品在煅烧 2 h 后即已生成“M-相”结构，煅烧时间增加，样品的峰形和位置并未发生改变。图 3 中，掺杂浓度的改变并未影响样品的结构，说明 Eu^{3+} 进入基质晶格当中，它的加入不会改变样品的晶体结构。

3.2　$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 红色荧光粉的激发光谱

图 4、5、6 所示分别为不同温度、不同煅烧时间、不同 Eu^{3+} 掺杂浓度合成的 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 荧光粉的激发光谱，监测波长均为 612 nm。图 4、图 6 激发谱线在 280 nm 的宽带可能属于 O^{2-}-Eu^{3+} 电荷迁移带跃迁，是由于电子从配位体 O^{2-}（$2p^6$）轨道转移到 Eu^{3+} 的 $4f^6$ 空轨道而产生的，激发谱线在 396，418，466 nm 处出现尖峰，分别对应于 Eu^{3+} 的 $^7F_0 \rightarrow {}^5L_6$、$^7F_0 \rightarrow {}^5D_3$、$^7F_0 \rightarrow {}^5D_2$ 电子跃迁[19]，反映了 Eu^{3+} 内部的 f-f 高能级跃迁吸收，从图 4、5、6 可以看出，850 ℃、煅烧 6 h、Eu_2O_3

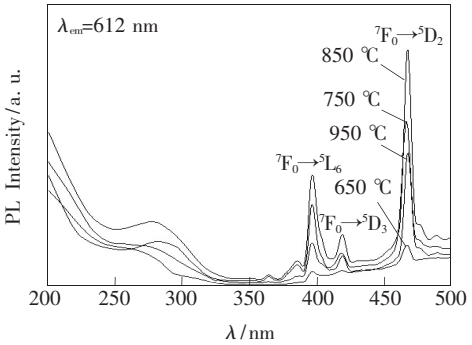

图 4　不同煅烧温度合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 荧光粉的激发光谱

Fig. 4　Excitation spectra of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ phosphor sintered at different temperatures

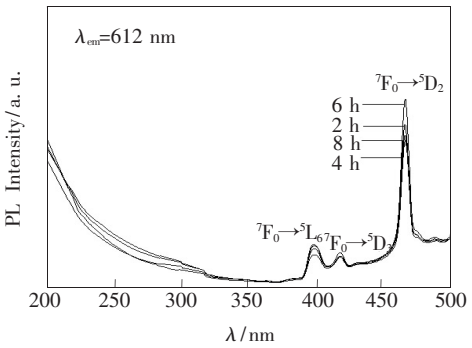

图 5　不同煅烧时间合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ 荧光粉的激发光谱

Fig. 5　Excitation spectra of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$：$Eu^{3+}$ phosphor sintered for different hours

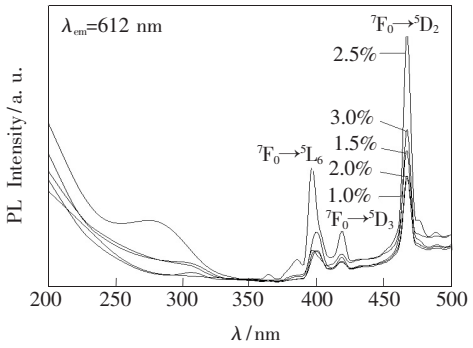

图6 不同 Eu^{3+} 掺杂浓度合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的激发光谱

Fig. 6 Excitation spectra of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ phosphors of different Eu^{3+} doping concentrations

掺入质量分数为2.5%的样品分别获得了最强的激发峰,且激发峰位置均位于466 nm处,这为蓝光区的有效激发提供了可能。

3.3 煅烧温度对 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉发光性能的影响

图7为不同煅烧温度合成的 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的发射光谱,激发波长为466 nm。从图中可以看出,550~650 nm范围内主要有两个发射峰,分别归属于 Eu^{3+} 的 $^5D_0\rightarrow{}^7F_1$(593 nm)和 $^5D_0\rightarrow{}^7F_2$(612 nm)能级跃迁[20],属于 Eu^{3+} 的4f-4f特征跃迁。其中在612 nm处的发射峰最强,样品在466 nm的蓝光激发下,呈现红色发光。发射光谱的形状随着温度的改变发生了变化,但是发射峰的位置没有太大的改变。随着煅烧温度的升高,样品的发光呈现先增强后减弱的趋势,在850 ℃煅烧后的样品发光最强。分析上述这种现象,可能有两方面的原因:首先,当温度较低时,

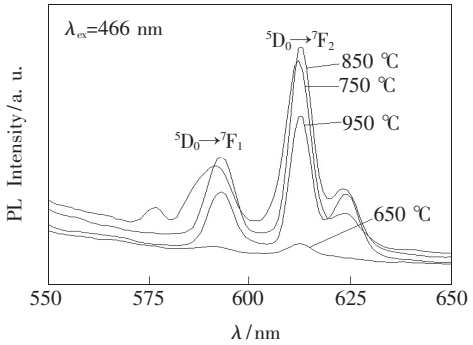

图7 不同煅烧温度合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的发射光谱

Fig. 7 Emission spectra of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ phosphor sintered at different temperatures

Eu^{3+} 的扩散难以进行,从而影响了 Eu^{3+} 与基质粒子之间的取代反应,发光中心较少,发光强度低,提高温度,取代反应更易进行,发光中心逐渐增多;其次,温度升高,样品结晶程度增加,基质晶格进一步完善,所以650 ℃、750 ℃煅烧出的样品发光强度没有850 ℃煅烧的样品高。温度超过850 ℃,发光强度反而降低,可能是因为温度过高,造成了样品过烧,晶粒过度长大。

3.4 煅烧时间对 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉发光性能的影响

图8为850 ℃不同煅烧时间合成的 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的发射光谱,激发波长为466 nm。样品在可见光波段有红光发射,属于 Eu^{3+} 的4f-4f特征跃迁。经850 ℃保温不同时间的样品在593 nm和612 nm处存在明显的发射峰,对应于 Eu^{3+} 的 $^5D_0\rightarrow{}^7F_1$ 和 $^5D_0\rightarrow{}^7F_2$ 跃迁,且都是 $^5D_0\rightarrow{}^7F_1$ 强度低于 $^5D_0\rightarrow{}^7F_2$ 跃迁,即电偶极跃迁比磁偶极跃迁突出[21]。发射光谱的形状和位置没有随着煅烧时间的变化发生改变,说明煅烧时间的改变并不会影响 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的晶体结构。随着煅烧时间的增加,$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的发射峰呈现先增强后减弱的趋势,在煅烧6 h后,样品的发射峰强度达到最大,主要是因为晶体得到充分时间长大,晶格进一步完善,材料的结晶度增加,发光效果越来越好。但是样品在煅烧8 h后,发光反而减弱了。

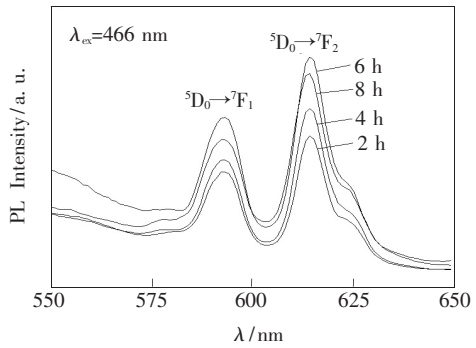

图8 不同煅烧时间合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉的发射光谱

Fig. 8 Emission spectra of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ phosphors sintered for different hours

3.5 掺杂浓度对 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3:Eu^{3+}$ 荧光粉发光性能的影响

图9为不同 Eu^{3+} 掺杂浓度合成的 $Li_{1.0}Nb_{0.6}$-

$Ti_{0.5}O_3$: Eu^{3+} 荧光粉的发射光谱图。在 Eu_2O_3 掺入质量分数为 1.0% ~3.0% 范围内改变 Eu^{3+} 浓度,在 466 nm 蓝光激发下测量不同 Eu^{3+} 浓度下 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$: Eu^{3+} 荧光粉的发光强度。当 Eu_2O_3 掺入质量分数为 2.5% 时强度达到最大。浓度的增加,使得布居在 $^5D_0$ 能级上的 Eu^{3+} 粒子数增加,进而加大了 Eu^{3+} 从 $^5D_0$ 能级向 $^7F_2$ 能级

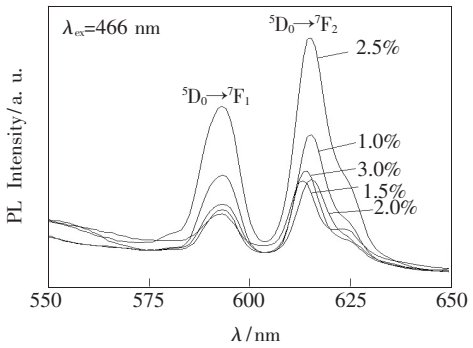

图 9　不同 Eu^{3+} 掺杂浓度合成 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$: Eu^{3+} 荧光粉的发射光谱

Fig. 9　Emission spectra of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$: Eu^{3+} phosphor of different Eu^{3+} doping concentrations

的辐射跃迁的几率,所以样品在612 nm处的发光得到了增强。当 Eu_2O_3 掺入质量分数增加到 3% 时,样品的发光反而减弱了,可能是由于发生了浓度猝灭现象[22]。一方面,Eu^{3+} 浓度的增加,增大了粒子之间互相传递能量的几率,但也会使大部分能量以热振动的形式消耗掉,而不是用来发光;其次,激活离子 Eu^{3+} 浓度过高,会导致一个晶胞中吸引 2 个甚至更多的激活离子,使原先不对称的晶胞结构转变为中心对称结构,不对称性晶场力变小,发光强度降低。

4　结　　论

本文采用溶胶-凝胶法制备 $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$: Eu^{3+} 红色荧光粉,样品主要由“M-相”组成。在 466 nm 蓝光激发下,样品有较强的橙光(593 nm)和红光(612 nm)发射,分别对应 Eu^{3+} 的 $^5D_0 \rightarrow {}^7F_1$ 和 $^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$ 特征跃迁。样品的最佳烧结温度为 850 ℃,最佳烧结时间为 6 h,最佳的 Eu_2O_3 掺入质量分数为 2.5%。$Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$: Eu^{3+} 荧光粉具有良好的发光性能,是一种有潜在应用前景的白光 LED 用红色荧光粉。

参 考 文 献:

[1] 雷玉堂, 黎慧. 未来的照明光源——白光 LED 技术及其发展 [J]. 光学与光电技术, 2003, 1(5):33.
LEI Y T, LI H. Lighting source in the future—white-light LED [J]. *Opt. Optoelectron. Technol.*, 2003, 1(5):33. (in Chinese)

[2] 刘行仁. 白光 LED 固态照明光转换荧光体 [J]. 发光学报, 2007, 28(3):291-301.
LIU X R. Phosphors for white LED solid state lighting [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2007, 28(3):291-301. (in Chinese)

[3] 胡运生, 庄卫东, 叶信宇, 等. 半导体照明用荧光粉的研究进展 [J]. 新材料产业, 2008(5):50-54.
HU Y S, ZHUANG W D, YE X Y, *et al.*. Research progress of phosphors for semiconductor lighting [J]. *Adv. Mater. Ind.*, 2008(5):50-54. (in Chinese)

[4] 曾琦华, 张信果, 梁宏斌, 等. 白光 LED 用荧光粉的研究进展 [J]. 中国稀土学报, 2011, 29(1):8-17.
ZENG Q H, ZHANG X G, LIANG H B, *et al.*. Progress of research on phosphor for white-light emitting diodes [J]. *J. Chin. Rare. Earth. Soc.*, 2011, 29(1):8-17. (in Chinese)

[5] 游维雄, 孙坤磊, 肖宗梁, 等. $Y_2Ti_2O_7$: Tm^{3+} 的制备及其发光性能研究 [J]. 发光学报, 2015, 36(3):267-271.
YOU W X, SUN K L, XIAO Z L, *et al.*. Synthesis and luminescence properties of $Y_2Ti_2O_7$: Tm^{3+} phosphor [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2015, 36(3):267-271. (in Chinese)

[6] LI X Y, ZHOU J. Characterization of luminescent LTCC composite materials for white LED package [J]. *Adv. Mater. Res.*, 2014, 873:761-769.

[7] YAN C, SUN L, LIAO C, *et al.*. Eu^{3+} ion as fluorescent probe for detecting the surface effect in nanocrystals [J]. *Appl. Phy. Lett.*, 2003, 82(20):3511-3514.

[8] BAE J S, JEONG J H. Improved photoluminescence of pulsed-laser-ablated Y_2O_3: Eu^{3+} thin-film phosphors by Gd substitution [J]. *Appl. Phy. Lett.*, 2003, 82(21):3629-3631.

[9] BORISEVICH A, DAMES P K. Microwave dielectric properties of $Li_{1+x-y}Nb_{1-x-3y}Ti_{x+4y}O_3$ ($M = Nb^{5+}, Ta^{5+}$) solid

solutions [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2001, 21(10-11):719-1722.

[10] ZENG Q, LI W, SHI J L, *et al.*. A new microwave dielectric ceramic for LTCC applications [J]. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2006, 89(5):1733-1735.

[11] ZENG Q, LI W, SHI J L, *et al.*. Effect of B_2O_3 on the sintering and microwave dielectric properties of M-phase $LiNb_{0.6}$-$Ti_{0.5}O_3$ ceramics [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2007, 27(1):261-265.

[12] KANG D H, NAM K C, CHA H J. Effect of Li_2O-V_2O_5 on the low temperature sintering and microwave dielectric properties of $Li_{1.0}Nb_{0.6}Ti_{0.5}O_3$ ceramics [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2006, 26(10-11):2117-2121.

[13] HAYASHI H, NAKANO H, JONES M I. Microstructure and luminescence of Eu-doped $Li_{1+x-y}Nb_{1-x-3y}$-$Ti_{x+4y}O_3$ solid solutions with superstructure [J]. *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 2010, 118(1375):226-230.

[14] HAYASHI H, NAKANO H, JONES M I. Microstructure and luminescence of rare earth doped $Li(Nb,Ti)O_3$ solid solutions [J]. *J. Mater. Sci. Eng.*, 2011, 18(8):082018-1-4.

[15] 王飞, 周志勇, 曾群, 等. Eu^{3+}掺$5Li_2O$-$1Nb_2O_5$-$5TiO_2$发光陶瓷的制备及性能研究 [J]. 发光学报, 2017, 38(3):269-273.

WANG F, ZHOU Z Y, ZENG Q, *et al.*. Preparation and properties of Eu-doped $5Li_2O$-$1Nb_2O_5$-$5TiO_2$ ceramics [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2017, 38(3):269-273. (in Chinese)

[16] 何晓林, 杨定明, 廖其龙, 等. 溶胶-凝胶法制备Li_2ZnSiO_4:Sm^{3+}红色荧光粉 [J]. 人工晶体学报, 2014, 43(3):532-536.

HE X L, YANG D M, LIAO Q L, *et al.*. Preparation of red phosphor Li_2ZnSiO_4:Sm^{3+} by sol-gel method [J]. *J. Synth. Cryst.*, 2014, 43(3):532-536. (in Chinese)

[17] 曹文强, 李峻峰, 何苗苗, 等. $AlPO_4$:xEu^{3+}红色荧光粉的制备及发光性研究 [J]. 电子元件与材料, 2015, 34(12):44-47.

CAO W Q, LI J F, HE M M, *et al.*. Preparation and luminescent properties of $AlPO_4$:xEu^{3+} red-emitting phosphor [J]. *Electron. Compon. Mater.*, 2015, 34(12):44-47. (in Chinese)

[18] 董其铮, 何玲, 孙卫民. 溶胶凝胶法制备$(Y,Gd)(V,P)O_4$:Eu^{3+}纳米红色荧光粉 [J]. 兰州理工大学学报, 2016, 42(1):31-34.

DONG Q Z, HE L, SUN W M. Preparation of red nano-phosphor $(Y,Gd)(V,P)O_4$:Eu^{3+} by using sol-gel method [J]. *J. Lanzhou. Univ. Technol.*, 2016, 42(1):31-34. (in Chinese)

[19] NAKANO H, FURUYA S, FUKUDA K, *et al.*. Synthesis and luminesc;ence enhancement of Eu^{3+}, Sm^{3+}, co-doped $Li_{1.11}Ta_{0.89}Ti_{0.11}O_3$ phosphor [J]. *Mater. Res. Bull.*, 2014, 60:766-770.

[20] KANG M, LIU J, YIN G F, *et al.*. Preparation and characterization of Eu^{3+}-doped $CaCO_3$ phosphor by microwave synthesis [J]. *Rare Met.*, 2009, 28(5):439-444.

[21] SUN L D, QIAN C, LIAO C S, *et al.*. Luminescence phosphors of Li^+ doped nanosized Y_2O_3:Eu^{3+} [J]. *Solid State Commun.*, 2001, 119(6):393-396.

[22] SETLUR A A, COMANZO H A, SRIVASTAVA A M, *et al.*. Spectroscopic evaluation of a white light phosphor for UV-LEDs-$Ca_2NaMg_2V_3O_{12}$:Eu^{3+} [J]. *J. Electrochem. Soc.*, 2005, 152(12):205-208.

周鹤(1992-),男,江苏常州人,硕士研究生,2015年于江苏大学获得学士学位,主要从事微波介质陶瓷和发光材料的研究。

E-mail: 2015020853@m.scnu.edu.cn

曾群(1982-),女,湖南邵阳人,博士,副研究员,2008年于中国科学院上海硅酸盐研究所获得博士学位,主要从事光电功能陶瓷材料及其元器件的研究。

E-mail: qunzeng@scnu.edu.cn