



# 基于超声喷雾热解法制备的球形 YAG: Eu<sup>3+</sup> 荧光粉性能表征

陈 静, 祝洪良, 刘一夫, 李 雪  
(浙江理工大学材料科学与工程学院, 杭州 310018)

**摘 要:** 为实现球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的大规模生产, 提出通过超声喷雾热解法制备尺寸均匀的球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉。先将含有三种金属离子(Y、Al 和 Eu)的硝酸盐配置成前驱体溶液, 然后利用超声高频谐振器将前驱体溶液转为雾滴, 再将前驱体雾滴在管式炉中快速蒸发、脱水, 聚拢成球形固体前驱体, 最后在 900 °C 的管式炉中原位晶化转为 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉。采用 X 射线衍射(XRD)、扫描电子显微镜(SEM)和能量色散 X 射线光谱(EDS)对产物的物相、形貌和成分进行分析。结果表明: 制备所得产物是纯立方结构的 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉, 呈现出规则的球形形貌, 尺寸分布范围窄(1.00~3.00 μm), 平均直径为 1.59~2.55 μm; 荧光粉直径会随着前驱体摩尔浓度的升高而增大; 发光光谱显示, 球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉在紫外光的激发下, 在 594 nm 和 615 nm 处表现出典型的红光发射。文章采用的超声喷雾热解法具有连续、可控、产物均匀规律等特点, 有望在球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的生产中得到实际应用。

**关键词:** YAG:Eu<sup>3+</sup>; 荧光粉; 超声喷雾热解法; 发光性能

中图分类号: TB34

文献标志码: A

文章编号: 1673-3851(2020)05-0595-07

## Performance characterization of spherical YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphors prepared by ultrasonic spray pyrolysis

CHEN Jing, ZHU Hongliang, LIU Yifu, LI Xue

(School of Materials Science and Engineering, Zhejiang Sci-Tech University, Hangzhou 310018, China)

**Abstract:** In order to achieve large-scale production of YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphors, a method was proposed to prepare spherical YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphors with a uniform size by ultrasonic spray pyrolysis process. In this process, the nitrates containing three metal ions (Y, Al and Eu) were mixed to prepare precursor solutions which were then converted into mist droplets by using an ultrasonic high-frequency resonator. Next, the precursor mist droplets were evaporated and dehydrated fast in the tube furnace to gather into a spherical solid precursor. Finally, the spherical solid precursor was crystallized in situ in a 900 °C tube furnace to transform into YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphor. X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscope (SEM) and energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS) were used to analyze the phase, morphology and composition of the product. The results show that: the product is YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphor with a pure cubic structure. The products presented regular spherical morphology, and the size distribution range was narrow (1.00~3.00 μm), with the average diameter of 1.59~2.55 μm. Moreover, the product diameter would increase with the rise of molar concentration of the precursor. Luminescence spectroscopy studies show that spherical YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphors exhibited typical red light emission at 594 nm and 615 nm under

收稿日期: 2020-03-27 网络出版日期: 2020-06-03

基金项目: 国家自然科学基金项目(51872262); 浙江省自然科学基金项目(LY18B010008)

作者简介: 陈 静(1994-), 女, 四川德阳人, 硕士研究生, 主要从事锂离子电池材料制备方面的研究。

通信作者: 祝洪良, E-mail: zhuhl@zstu.edu.cn

the excitation of ultraviolet light. Compared with the traditional process, the new ultrasonic spray pyrolysis process proposed in this paper has the characteristics of continuity, controllability and uniformness, and is expected to be practically applied in the production of  $\text{YAG:Eu}^{3+}$  phosphor.

**Key words:**  $\text{YAG:Eu}^{3+}$ ; phosphors; ultrasonic spray pyrolysis; luminescence performance

## 0 引言

钇铝石榴石  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG) 是一种复合氧化物, 具有稳定的物理化学性质和优异的光学性能, 可作为在激光和发光领域广泛使用的基质材料<sup>[1-2]</sup>。目前, 在 YAG 中掺入 Eu、Cr、Tb、Dy、Ce、Sm 等稀土元素, 可制备性能优良的荧光粉<sup>[3-5]</sup>。YAG:Eu<sup>3+</sup> 是 YAG 基质中掺入约 5% 的 Eu<sup>3+</sup> 形成的红光荧光粉, 具有发光性能好、高温化学性能稳定等特点, 而被广泛应用于发光二极管(LED)<sup>[6]</sup> 和场发射显示器<sup>[7]</sup>。作为一种优异的红色荧光粉, 微米、亚微米 YAG:Eu<sup>3+</sup> 已在工业中使用了数十年<sup>[8]</sup>。

对微米、亚微米 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的制备, 工业中所采用的方法多为高温固相烧结法。但该方法制备过程需要高温长时间热处理, 耗能严重, 且生成副产物种类多, 难以得到纯净的 YAG 相。此外, 由于固相烧结产物存在颗粒不均, 形状不规则的缺点, 需进行二次研磨及洗粉等后处理。繁琐的工艺极易引入杂质, 对荧光粉造成污染, 使其发光性能及耐久性降低<sup>[9]</sup>。在封装 LED 器件的过程中, 荧光粉通常还需要与环氧树脂混合后经点胶工艺涂覆在 LED 芯片上。黎学明等<sup>[10]</sup> 研究表明, 尺寸分布窄、具有分散良好的球形形貌的荧光粉由于其表面可以对入射光线产生规则散射, 具有表面光散射低、涂覆堆积密度高、涂覆 LED 器件时用量少和使用寿命长等优点。因而, 寻找高效、连续的方法制备出尺寸分布窄的球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉成为了近年来的研究重点。

目前, 研究者已提出了多种方法来制备微米、亚微米 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉, 如改良固态反应法<sup>[11]</sup>、金属有机化学气相沉积(MOCVD)法<sup>[12]</sup>、溶胶-凝胶法<sup>[13]</sup> 与水热法<sup>[14]</sup> 等。其中改良固态反应法仍然需要高温反应; MOCVD 法成本太高; 溶胶-凝胶法制备 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的过程则需大量溶剂、制备周期长、不易量产; 水热法虽然能制备尺寸分布窄的球形的粉末, 但是生产周期太长, 难以实现连续化、规模化生产。超声喷雾热解法是近些年应用于材料制备的一种新方法<sup>[15-17]</sup>, 该法主要是将超声雾化器将物料(溶液、溶胶)高频谐振成雾滴, 雾滴在高温反应室内迅速脱水热解, 直接形成固体颗粒, 产物具有形

状规则、分布均匀与分散性好等优点<sup>[18]</sup>。基于连续、高效, 且易于大规模生产的特点, 超声喷雾热解法被公认为是制备球形氧化物极具前景的方法<sup>[19-21]</sup>。

为连续化与规模化生产微米球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉, 本文采用高效、连续的超声喷雾热解法制备 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉。通过调控前驱体阳离子总摩尔浓度, 对 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的结构、微观形貌和发光性能进行研究。鉴于该方法高效、连续的特点, 有望在 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉生产领域得到实际应用。

## 1 实验

### 1.1 实验材料

六水合硝酸钇( $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 纯度为 99.9%)、六水合硝酸铕( $\text{Eu}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 纯度为 99.9%) 和九水合硝酸铝( $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , 纯度为 99.9%)。上述试剂均为分析纯, 购自华东医药股份有限公司。

### 1.2 实验方法

#### 1.2.1 制备前驱体溶液

将 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉中的 Eu<sup>3+</sup> 摩尔浓度固定为 5%, 即产物为  $(\text{Y}_{0.95}\text{Eu}_{0.05})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 。考虑到硝酸盐易于溶解, 且易受热分解形成复合氧化物, 以硝酸钇、硝酸铕、硝酸铝为前驱体。设置 4 种对比试验, 分别将阳离子总摩尔浓度配置为 0.25、0.50、1.00 mol/L 和 2.00 mol/L 的 4 种混合溶液, 溶液中各组分比例不变, 在其他条件相同下采用超声喷雾热解法制备出 4 种样品。将这 4 种样品分别称为  $S_{0.25}$ 、 $S_{0.5}$ 、 $S_1$  和  $S_2$ , 样品  $S_{0.25}$  即表示用阳离子总摩尔浓度为 0.25 mol/L 的溶液制备得到的样品。以  $S_{0.25}$  的前驱体溶液制备为例。首先, 在室温下量取 0.148 mol 的  $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 0.009 mol 的  $\text{Eu}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  以及 0.247 mol 的  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , 然后将其溶解在 200 mL 去离子水中, 磁力搅拌 30 min。 $S_{0.5}$ 、 $S_1$  和  $S_2$  的前驱体溶液制备过程与  $S_{0.25}$  相同。

#### 1.2.2 超声喷雾热解法制备球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉

球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的制备实验在超声喷雾仪器中进行, 其示意图如图 1 所示。喷雾仪器的

主要组成部分是: 频率为 1.7 MHz 的医用超声雾化器 a、石英管炉 b(BTF-1500C, BEO, 恒温区为 0.3 m, 载气为空气)、石英舟 c(样品收集器)和气体洗涤瓶 d(用于去除尾气中的粉尘)。在制备过程中, 均匀混合的前驱体溶液(包括  $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O/Eu(NO_3)_3 \cdot 6H_2O/Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ )被超声雾化器 a(1.7 MHz)高频谐振成细小雾滴, 雾滴因表面张力自发形成球形, 雾滴随载气进入 900 °C 的管式炉 b, 高温使溶剂从雾滴表面蒸发。在溶剂蒸发过程中, 雾滴会迅速收缩, 进一步加热会导致前驱体分解为金属氧化物和氮氧化物气体, 气体通过洗气瓶 d 后排入大气, 金属氧化物之间发生固相反应形成的 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉收集于石英舟 c。整个过程是连续的, 理论上无需进一步热处理即可获得球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉并进行表征。此外, 球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉产率以样品 S<sub>0.25</sub> 制备为例(产率采用 3 次重复实验计算), 取 0.25 mol/L 的前驱体溶液 200 mL, 按质量守恒定律, 理想产物质量应为 29.7 g, 实际产物平均质量为 26.6 g, 产率约为 89.6%。

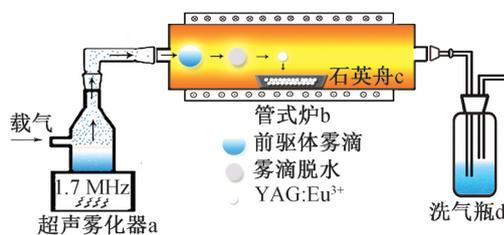


图 1 超声喷雾仪器的结构组成

### 1.3 测试与表征

采用 ARL-XTRA 型 X 射线衍射仪(Thermo ARL 公司), 以 Cu K $\alpha$ ( $\lambda = 0.154$  nm) 作为 X 光源对样品进行 XRD 测试; 采用 S-4800 型扫描电镜(日本 HITACHI 公司)观测样品的形貌与能谱图; 采用 F-4600 型荧光分光光度计(日本日立有限公司), 以 150 W 灯作为光源, 设定荧光测试模式测量样品的荧光光谱; 通过激光散射粒度分析仪(Model LA-950, Horiba, 日本)对样品的粒径进行测试。

## 2 结果与讨论

### 2.1 物相分析

本文对 4 种前驱体溶液经超声喷雾热解法制备得到的 4 种样品(S<sub>0.25</sub>、S<sub>0.5</sub>、S<sub>1</sub> 和 S<sub>2</sub>)均进行了 XRD 表征, 所得 XRD 图谱见图 2。由图 2 中尖锐的衍射峰可以看出, 4 个样品的结晶性良好。通过 Thermo ARL WinXRD 软件包分析, 4 种样品的衍射图谱完全一致, 并且这些衍射峰与立方晶型 YAG 的标准

卡片(JCPDS No.82-0575)基本吻合, 未发现其他衍射杂峰, 说明所有样品均为单相 YAG。这意味着通过超声喷雾热解法制备的球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉在 900 °C 这样的低温下, 已经完成了固相反应。这是由于前驱体溶液均匀混合, 喷出的雾滴各组分比例稳定, 质点必需的扩散路程短, 使得固相反应容易发生<sup>[23]</sup>。进一步分析表明, 图 2(a)~(d) 的衍射峰标准卡片(JCPDS No.82-0575)基本吻合, 但总体上发生了一个极细微的角度偏移。这是由于 Eu<sup>3+</sup> 离子半径为 95.0 pm, 而 Y<sup>3+</sup> 的离子半径为 89.3 pm, 在超声喷雾热解法形成 YAG:Eu<sup>3+</sup> 的过程, 5% 的 Eu<sup>3+</sup> 取代掉 Y<sup>3+</sup> 融入了 YAG 基质的晶格中, 使 YAG 的晶格产生了畸变。此外, 样品的 XRD 峰整体向左偏移, 这是因为 Eu<sup>3+</sup> 的离子半径明显大于被取代的 Y<sup>3+</sup> 的离子半径, 导致晶格常数变大, 从而引起峰位左移<sup>[22]</sup>。

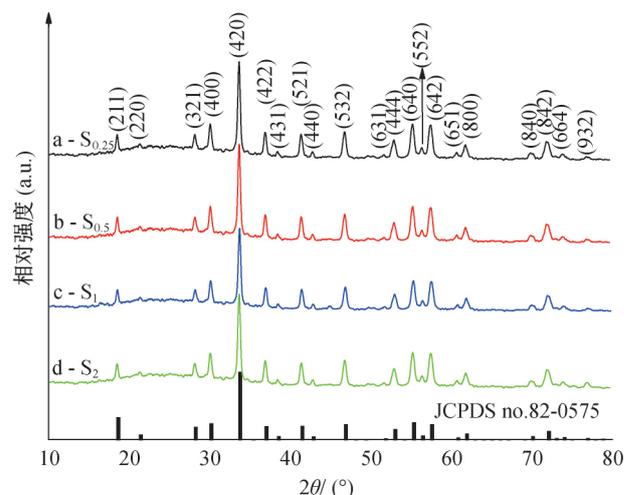


图 2 样品 XRD 图谱

### 2.2 形貌及尺寸分析

图 3 是 4 种不同摩尔浓度的前驱体溶液经超声喷雾热解法制备的球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的扫描电镜图, 图 3(a)~(d) 分别对应样品 S<sub>0.25</sub>、S<sub>0.5</sub>、S<sub>1</sub> 和 S<sub>2</sub>。如图 3 所示, 所有样品均具有规则的球形形态, 粒径为几微米, 分散性良好。样品的粒径分布图如图 4 所示, 4 种样品(S<sub>0.25</sub>、S<sub>0.5</sub>、S<sub>1</sub> 和 S<sub>2</sub>)的平均粒径分别为 1.59、1.71、2.14  $\mu$ m 和 2.55  $\mu$ m, 均在 1.00~3.00  $\mu$ m 之间, 尺寸分布窄, 符合工业生产及使用中最适合的荧光粉尺寸。进一步分析发现前驱体溶液摩尔浓度越高样品的平均粒径越大, 这是由于在超声喷雾热解过程中, 超声雾化器高频谐振出的雾滴经过高温管式炉迅速脱水并热解, 会直接形成荧光粉颗粒。保持仪器参数不变的情况下, 喷出的雾滴大小是一定的<sup>[24]</sup>。因此, 随前驱体溶液摩尔

浓度的增加,雾滴内包含的粒子数量增多,使得样品  $S_{0.25}$ 、 $S_{0.5}$ 、 $S_1$  和  $S_2$  的平均粒径依次增大。这说明超声喷雾热解法可以通过改变前驱体溶液的摩尔浓度有效的调控球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的尺寸。然而,  $S_1$ 、 $S_2$  两组样品粒径相差不大,这是由于在超声雾

化器固定的 1.7 MHz 功率下,喷出的雾滴粒径具有临界值,在临界处且不改变超声波频率的情况下,将前驱体溶液摩尔浓度从 1 mol/L 增加到 2 mol/L,无法大幅度增大雾滴的粒径,样品  $S_1$ 、 $S_2$  粒径也便无大幅度变化<sup>[25]</sup>。

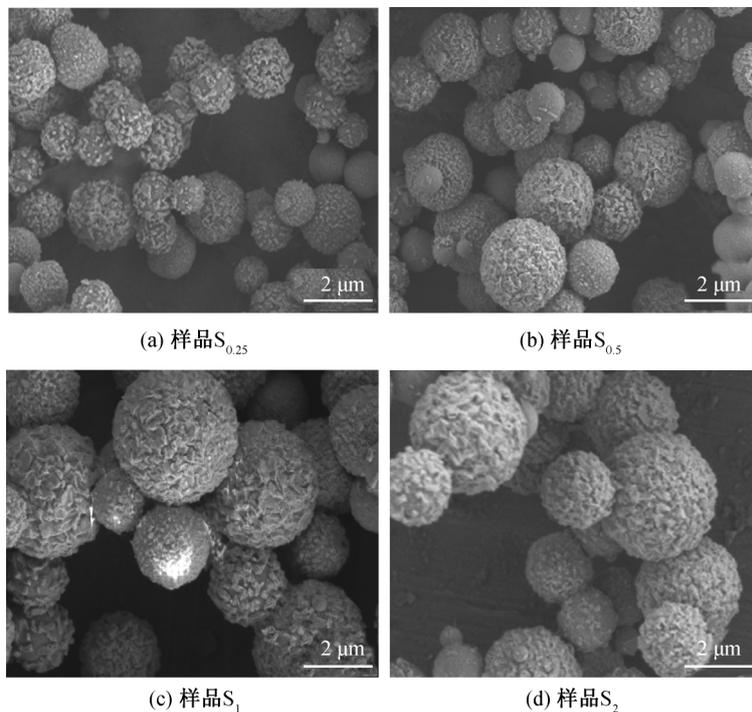


图3 球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的扫描电镜图

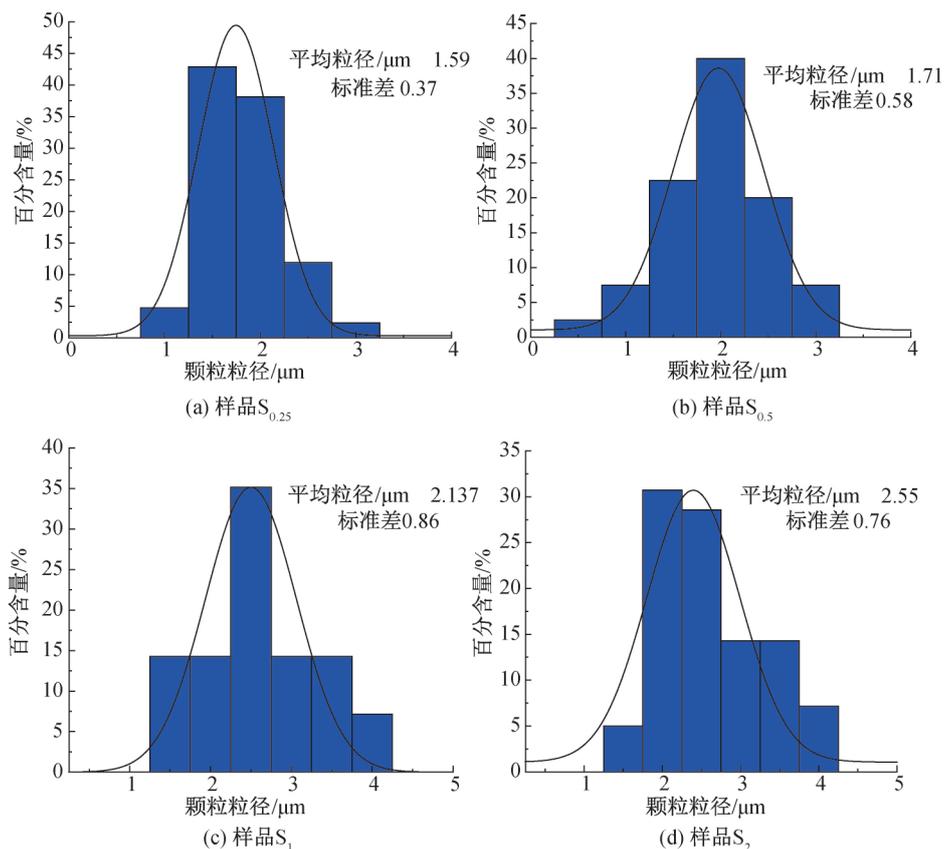


图4 球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的粒径分布图

### 2.3 化学成分和含量分析

能谱用于测量样品的化学成分和含量,由于文中 4 种样品的 Eu<sup>3+</sup> 离子含量相当,均为 (Y<sub>0.95</sub>Eu<sub>0.05</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>,故以样品 S<sub>0.25</sub> 的能谱为例进行能谱测试,结果如图 5。从图 5 中可以观察到 Y、Al、O 的强峰和 Eu 的弱峰,这些峰源自球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉。此外,还能观察到 Cu 和 Pt 的小峰,这些峰源自铜带。通过 EDAX 软件计算其定量化学组成,结果示于图 5 的插图中。Y、Al、O 和 Eu 的原子百分比分别为 14.46%、24.21%、59.63% 和 0.71%。由此,样品 S<sub>0.25</sub> 的 Y、Al、O 和 Eu 的原子比 Y<sub>2.92</sub>Eu<sub>0.14</sub>Al<sub>4.9</sub>O<sub>12</sub> 与理论上的 Y<sub>2.85</sub>Eu<sub>0.15</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 的 Y、Al、O 和 Eu 原子比基本一致。结合 XRD 结论分析,可以推论出该材料为 YAG:Eu<sup>3+</sup>。

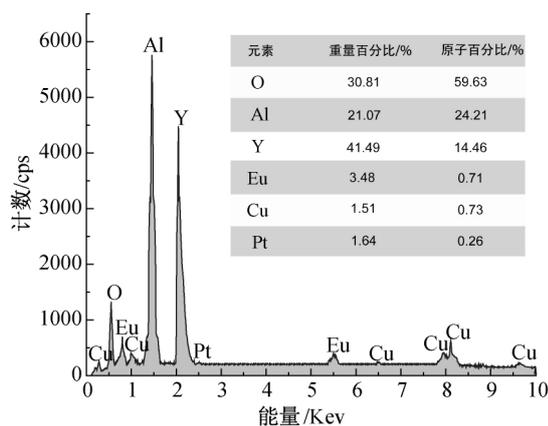
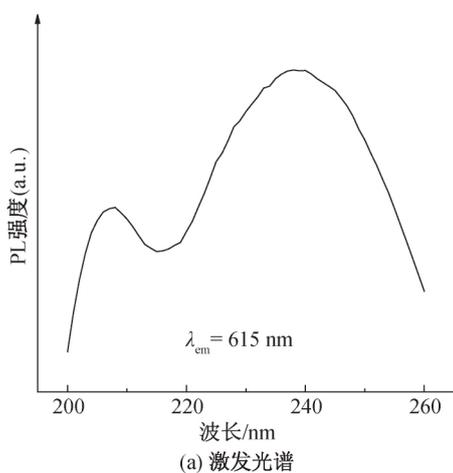


图 5 样品 S<sub>0.25</sub> 的能谱图



### 2.4 发光性能分析

球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的激发光谱和发射光谱如图 6 所示。由图 6(a)可以看出,YAG:Eu<sup>3+</sup> 的激发光谱在 220~260 nm 之间出现强的宽峰,最大值位于 240 nm 处,这是由于 O<sup>2-</sup> 和 Eu<sup>3+</sup> 离子之间的电荷迁移带。在 200~220 nm 之间出现的窄峰则是属于 Eu<sup>3+</sup> 离子的 f-f 跃迁<sup>[26]</sup>。图 6(b)为 4 种样品 S<sub>0.25</sub>、S<sub>0.5</sub>、S<sub>1</sub> 和 S<sub>2</sub> 用 240 nm 的紫外光激发样品时所得到的发射光谱图,图中显示 4 种样品的发射光谱主要集中在 500~700 nm 的可见区,均含一处强的发射峰和一处弱的发射峰,强发射峰位于 615 nm,弱发射峰位于 595 nm。在 YAG 的晶胞中,24 个 Al<sup>3+</sup> 位于四面体位置(4 个 O 离子与 Al<sup>3+</sup>),16 个 Al<sup>3+</sup> 位于八面体位置(6 个 O<sup>2-</sup> 与 Al<sup>3+</sup> 配位),24 个 Y<sup>3+</sup> 与 8 个 O<sup>2-</sup> 配位有 D<sub>2</sub> 点群对称结构。掺杂的 Eu<sup>3+</sup> 置换部分 Y<sup>3+</sup> 也拥有了 D<sub>2</sub> 点群对称结构。根据跃迁规则,615 nm 的峰值对应于 Eu<sup>3+</sup> 离子的典型强迫电偶极跃迁<sup>5</sup>D<sub>0</sub>-<sup>7</sup>F<sub>2</sub>,595 nm 的峰值对应于 Eu<sup>3+</sup> 离子的磁偶极跃迁<sup>5</sup>D<sub>0</sub>-<sup>7</sup>F<sub>1</sub><sup>[27-28]</sup>。此外,对比由超声喷雾热解法制备的 4 种样品的发射光谱图可发现,样品的发光强度与前驱体溶液的摩尔浓度呈正比例关系。这是由于 4 种样品中 Eu<sup>3+</sup> 摩尔浓度相当,随前驱体溶液摩尔浓度增加,产物尺寸增大、密实度增大,同时荧光粉表面缺陷减少,发光中心数量也有所提高,导致样品发光强度增大<sup>[29]</sup>。

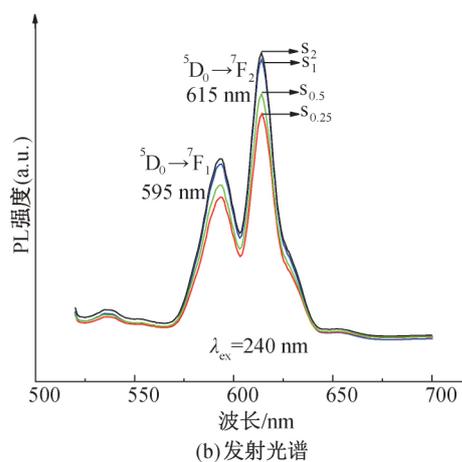


图 6 球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的荧光光谱图

## 3 结 论

本文通过高效、连续的超声喷雾热解法成功制备了球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉,系统表征了球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉的各项性能,所得主要结论如下:

a) 通过超声喷雾热解法制备的 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉是纯立方结构,无杂相的均匀微米球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉,具有窄的尺寸分布(1.00~3.00 μm),平均直径为 1.59~2.55 μm。通过改变前驱体溶液的摩尔浓度可调控产物的粒径。

b) 通过超声喷雾热解法制备的球形 YAG:Eu<sup>3+</sup> 荧光粉在 594 nm 和 615 nm 处显示出强红光发射,且样品的发光强度与前驱体溶液的摩尔浓度呈正比例关系。

#### 参考文献:

- [1] Game D N, Ingale N B, Omanwar S K. Converted white light emitting diodes from Ce<sup>3+</sup> doping of alkali earth sulfide phosphors[J]. *Materials Discovery*, 2016, 4:1-7.
- [2] Kurrey M S, Tiwari A, Khokhar M S K, et al. Thermoluminescence investigations of sol - gel derived and  $\gamma$ -irradiated rare earth (Eu and Nd) doped YAG nanophosphors [J]. *Journal of Luminescence*, 2015, 164:94-98.
- [3] Zhang R, Lin H, Yu Y L, et al. A new-generation color converter for high-power white LED: transparent Ce<sup>3+</sup>; YAG phosphor-in-glass [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8(1): 158-164.
- [4] Yi X Z, Zhou S M, Chen C, et al. Fabrication of Ce; YAG, Ce, Cr: YAG and Ce; YAG/Ce, Cr: YAG dual-layered composite phosphor ceramics for the application of white LEDs[J]. *Ceramics International*, 2014, 40(5): 7043-7047.
- [5] Maćzka M, Bednarkiewicz A, Mendoza-Mendoza E, et al. Low-temperature synthesis, phonon and luminescence properties of Eu doped Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (YAG) nanopowders [J]. *Materials Chemistry and Physics*, 2014, 143(3): 1039-1047.
- [6] Kolesnikov I E, Tolstikova D V, Kurochkin A V, et al. Eu<sup>3+</sup> concentration effect on luminescence properties of YAG:Eu<sup>3+</sup> nanoparticles[J]. *Optical Materials*, 2014, 37: 306-310.
- [7] Zhou Y H, Lin J, Wang S B, et al. Preparation of Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>: Eu phosphors by citric - gel method and their luminescent properties [J]. *Optical Materials*, 2002, 20(1): 13-20.
- [8] Song Z, Liao J, Ding X L, et al. Synthesis of YAG phosphor particles with excellent morphology by solid state reaction [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2013, 365: 24-28.
- [9] Ikesue A, Furusato I, Kamata K. Fabrication of polycrystal line, transparent YAG ceramics by a solid-state reaction method [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 1995, 78(1): 225-228.
- [10] 黎学明, 向星, 杨文静, 等. 化学共沉淀法合成 YAG:Eu<sup>3+</sup> 红色荧光粉及其光致发光性质[J]. *半导体光电*, 2010, 31(1): 71-74.
- [11] Yang H K, Jeong J H. Synthesis, crystal growth, and photoluminescence properties of YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphors by high-energy ball milling and solid-state reaction[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2010, 114(1): 226-230.
- [12] Li Y H, Zhang J H, Xiao Q Q, et al. Synthesis of ultrafine spherical YAG:Eu<sup>3+</sup> phosphors by MOCVD [J]. *Materials Letters*, 2008, 62(23): 3787-3789.
- [13] Hora D A, Andrade A B, Ferreira N S, et al. X-ray excited optical luminescence of Eu-doped YAG nanophosphors produced via glucose Sol-gel route[J]. *Ceramics International*, 2016, 42(8): 10516-10519.
- [14] Xu M M, Zhang Z J, Zhao J T, et al. Low temperature synthesis of monodispersed YAG:Eu crystallites by hydrothermal method [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2015, 647: 1075-1080.
- [15] Mishra P K, Wimmer R. Aerosol assisted self-assembly as a route to synthesize solid and hollow spherical lignin colloids and its utilization in layer by layer deposition[J]. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2017, 35: 45-50.
- [16] Das H, Sakamoto N, Aono H, et al. Investigations of superparamagnetism in magnesium ferrite nano-sphere synthesized by ultrasonic spray pyrolysis technique for hyperthermia application[J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2015, 392: 91-100.
- [17] Faber H, Lin Y H, Thomas S R, et al. Indium oxide thin-film transistors processed at low temperature via ultrasonic spray pyrolysis[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2015, 7(1): 782-790.
- [18] Zheng J W, Liu K H, Cai W, et al. Effect of chloride ion on crystalline phase transition of iron oxide produced by ultrasonic spray pyrolysis[J]. *Advanced Powder Technology*, 2018, 29(9): 1953-1959.
- [19] Choi H, Yoon S P, Han J, et al. Continuous synthesis of molybdenum oxide microspheres by ultrasonic spray pyrolysis [J]. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2017, 47: 254-259.
- [20] Košević M, Stopić S, Bulan A, et al. A continuous process for the ultrasonic spray pyrolysis synthesis of RuO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> particles and their application as a coating of activated titanium anode [J]. *Advanced Powder Technology*, 2017, 28(1): 43-49.
- [21] Su J Z, Zhang T, Li Y F, et al. Photocatalytic activities of copper doped cadmium sulfide microspheres prepared by a facile ultrasonic spray-pyrolysis method [J]. *Molecules*, 2016, 21(6): 735.
- [22] Ni H Y, Liang H B, Liu C M, et al. Luminescence of Eu<sup>3+</sup> in Two Different Sites of Na<sub>3</sub>GdSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub> and Gd<sup>3+</sup>

- [J]. ECS Journal of Solid State Science and Technology, 2012, 1(1): R27-R31.
- [23] Fu J, Daanen N N, Rugen E E, et al. Simple reactor for ultrasonic spray synthesis of nanostructured materials[J]. Chemistry of Materials, 2017, 29(1): 62-68.
- [24] 刘洋, 贾庆明, 蒋丽红, 等. 超声雾化法制备超细粉体的研究进展[J]. 化工新型材料, 2019, 47(5): 213-217.
- [25] Avvaru B, Patil M N, Gogate P R, et al. Ultrasonic atomization: Effect of liquid phase properties [J]. Ultrasonics, 2006, 44(2): 146-158.
- [26] 夏国栋, 周圣明, 张俊计, 等. 凝胶-燃烧法合成 YAG:Eu<sup>3+</sup> 纳米荧光材料的结构和发光性能[J]. 无机化学学报, 2005, 21(8): 1203-1207, 1111.
- [27] Jovanić B R, Radenković B, Despotović-Zrakić M, et al. High Pressure effect on fluorescence lifetime  $\tau$  for magnetic dipole  $5D^0 \rightarrow 5F^1$  transitions in YAG:Eu<sup>3+</sup> [J]. High Pressure Research, 2019, 39(1): 10-16.
- [28] 周建国, 赵凤英, 赵宝林, 等. Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>:Eu<sup>3+</sup> 磷光体的溶胶-凝胶法合成及发光特性[J]. 发光学报, 2003, 24(3): 239-242.
- [29] 张生冬, 王凤超, 邹军. 不同粒径 YAG 荧光粉对 LED 封装光源的影响研究[J]. 光电技术应用, 2014, 29(4): 21-23.
- [30] Bang J H, Suslick K S. Applications of ultrasound to the synthesis of nanostructured materials[J]. Advanced Materials, 2010, 22(10): 1039-1059.

(责任编辑:刘国金)