

NGHIÊN CỨU SỰ TRUYỀN NĂNG LƯỢNG GIỮA Ce^{3+} VÀ Tb^{3+} TRONG VẬT LIỆU NỀN $BaAl_2O_4$

A STUDY ON THE ENERGY TRANSFER BETWEEN Ce^{3+} AND Tb^{3+} IN $BaAl_2O_4$

Phan Liễn¹, Lê Vũ Trường Sơn¹, Trịnh Ngọc Đạt¹, Phạm Văn Tuấn¹,
Đặng Ngọc Toàn², Đinh Thanh Khấn¹, Lê Văn Thanh Sơn¹

¹Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng; plien@ued.udn.vn

²Viện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ cao – Trường Đại học Duy Tân

Tóm tắt - Vật liệu $BaAl_2O_4$: $x\%Tb_4O_7$; $y\%CeO_2$ ($x = 0$ và 1 ; $y = 0 \div 2$) được tổng hợp bằng phương pháp phản ứng pha rắn. Cấu trúc tinh thể và các đặc trưng quang học của các vật liệu được nghiên cứu bằng các phép đo nhiễu xạ tia X, kính hiển vi điện tử quét, phổ tán xạ năng lượng tia X và quang phát quang. Từ phổ kích thích chúng ta thấy rằng bước sóng 315 nm là tối ưu để làm bước sóng kích thích. Phổ phát quang của các vật liệu trong khoảng bước sóng từ ~350 nm đến ~430 nm của Ce^{3+} và các đỉnh tại các bước sóng 489 nm, 543 nm và 586 nm lần lượt ứng với các chuyển dời điện tử $^5D_4 \rightarrow ^7F_j$ ($j = 6, 5, 4$) của Tb^{3+} . Khi tăng nồng độ pha tạp của CeO_2 trong khi giữ nguyên nồng độ Tb_4O_7 thì cường độ phát quang của Tb^{3+} tăng trong khi cường độ phát quang của Ce^{3+} giảm. Điều này chứng tỏ có sự truyền năng lượng từ Ce^{3+} sang Tb^{3+} . Hiệu suất truyền năng lượng đạt tới 71,57% ứng với mẫu S3.

Từ khóa - Phát quang; truyền năng lượng; ion Tb^{3+} và Ce^{3+} ; nền Aluminate.

1. Giới thiệu

Trong những năm gần đây, nhiều nỗ lực nghiên cứu đã hướng tới việc tổng hợp các vật liệu aluminate pha tạp đất hiếm (RE^{3+}) vì chúng có thể được sử dụng làm chất lân quang, chất xúc tác và vật liệu quang học nhờ các đặc tính quang học, điện tử và hóa học độc đáo của chúng [1]. Đối với các ứng dụng liên quan đến kích thích ở vùng tử ngoại gần (300 - 400 nm) để tạo ra nhiều loại màn hình khác nhau, ion Tb^{3+} là một chất kích hoạt phù hợp, phát ra ánh sáng xanh trong mạng nền aluminate. Tuy nhiên, cường độ của các đỉnh hấp thụ Tb^{3+} trong vùng tử ngoại gần rất yếu và chiều rộng của chúng rất hẹp do quá trình chuyển dời $4f - 4f$ bị cấm. Điều này làm giảm hiệu suất phát quang khi kích thích trong vùng tử ngoại gần [2-4]. Một trong các cách để giải quyết vấn đề trên là sử dụng ion Ce^{3+} như một chất tăng nhạy. Vì Ce^{3+} có dải kích thích mạnh bắt nguồn từ chuyển tiếp $4f - 5d$ cho phép, có thể hấp thụ ánh sáng tử ngoại gần một cách hiệu quả và chuyển năng lượng kích thích sang Tb^{3+} , sau đó dẫn đến tăng cường độ phát xạ xanh của Tb^{3+} [4-7].

Các ion Ce có thể ở trạng thái hóa trị ba hoặc hóa trị bốn. Chỉ có trạng thái Ce^{3+} với một electron duy nhất ở lớp $4f$ là hoạt động quang học mạnh, trong khi Ce^{4+} là phát quang yếu. Khi được nung trong môi trường khử (hiếm khí) ion Ce^{4+} sẽ chuyển thành Ce^{3+} , do đó cải thiện sự phát quang của Ce [8].

Cho đến nay, việc đồng pha tạp Ce^{3+} và Tb^{3+} đã được nhiều nhà khoa học công bố trên các tạp chí lớn: J. M. Ogilvie cùng các cộng sự đã nghiên cứu quá trình truyền năng lượng giữa Ce^{3+} và Tb^{3+} trên nền $Lu_2Al_5O_{12}$ nhưng

Abstract - $BaAl_2O_4$: $x\%Tb_4O_7$; $y\%CeO_2$ ($x = 0$ and 1 ; $y = 0 \div 2$) materials are synthesized by the solid phase reaction method. The structural and optical properties of the phosphors are investigated by using X-ray powder diffraction, scanning electron microscopy, energy dispersive X-ray spectroscopy and photoluminescence measurements. The photoluminescence excitation spectra show that the wavelength of 315 nm is optimal to excite the luminescence of Tb^{3+} and Ce^{3+} in the $BaAl_2O_4$ material. The photoluminescence spectra of the materials consist of band located from ~350 nm to ~430 nm of Ce^{3+} and a series of peaks at 489 nm, 543 nm, and 586 nm, corresponding to Tb^{3+} electronic transitions of $^5D_4 \rightarrow ^7F_j$ ($j = 6, 5, 4$), respectively. The emission intensity of Tb^{3+} is significantly enhanced and ones of Ce^{3+} is reduced when we increase the CeO_2 doping concentration and keep the same of Tb_4O_7 doping concentration. These results clearly indicate the energy transfer from Ce^{3+} to Tb^{3+} . The energy transfer efficiency reaches up to 71,57% for sample S3.

Key words - Photoluminescence; Energy transfer; Tb^{3+} and Ce^{3+} ions; Aluminate.

không đề cập đến hiệu suất truyền năng lượng và chỉ giải thích định tính về quá trình truyền năng lượng. Các phép đo quang học được thực hiện ở nhiệt độ thấp [9]. X. Z. Qin và cộng sự cũng tiến hành nghiên cứu quá trình truyền năng lượng giữa Ce^{3+} và Tb^{3+} trên nền $NaCaBO_3$. Ở đây ông đã sử dụng bước sóng 347 nm tương ứng với quá trình chuyển dời $4f - 5d$ của Ce^{3+} làm bước sóng kích thích cho vật liệu [10]. Ngoài ra, nhóm tác giả Z. G. Xia và R. S. Liu đã tính toán hiệu suất truyền năng lượng giữa Ce^{3+} và Tb^{3+} trên nền $Ca_2Al_3O_6F$ là 90% và sử dụng bước sóng 350 nm (phù hợp cho cả Ce^{3+} và Tb^{3+} trong nền vật liệu này) làm bước sóng kích thích [11]. Trong tất cả các nghiên cứu trên người ta đều giữ nguyên nồng độ Ce^{3+} và thay đổi nồng độ Tb^{3+} . Đối với nghiên cứu này nhóm tác giả làm ngược lại, giữ nguyên nồng độ Tb^{3+} và thay đổi nồng độ Ce^{3+} .

Trong bài báo này, quá trình truyền năng lượng của Ce^{3+} và Tb^{3+} trong mạng nền $BaAl_2O_4$ đã được nghiên cứu một cách có hệ thống thông qua phổ nhiễu xạ tia X (XRD), phổ kích thích (PLE), phổ phát quang (PL), phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS), hình thái bề mặt (SEM).

2. Thực nghiệm

Vật liệu $BaAl_2O_4$ đồng pha tạp các ion đất hiếm Tb^{3+} và Ce^{3+} được chế tạo bởi phương pháp phản ứng pha rắn. Hỗn hợp các tiền chất gồm $BaCO_3$ (99,9%), Al_2O_3 (99,0%), Tb_4O_7 (99,9%) và CeO_2 (99,9%) được trộn theo tỉ lệ thích hợp (trình bày chi tiết ở Bảng 1). Hỗn hợp trên được nghiền trộn trong máy nghiền hành RETSCH MM 400 trong thời gian 60 phút với tần số 15 Hz. Sau đó, hỗn hợp được nung ở nhiệt độ 1300°C trong 2 giờ với tốc độ gia nhiệt 10°C/1 phút trong môi trường khử. Khi nung xong, hỗn hợp được nghiền

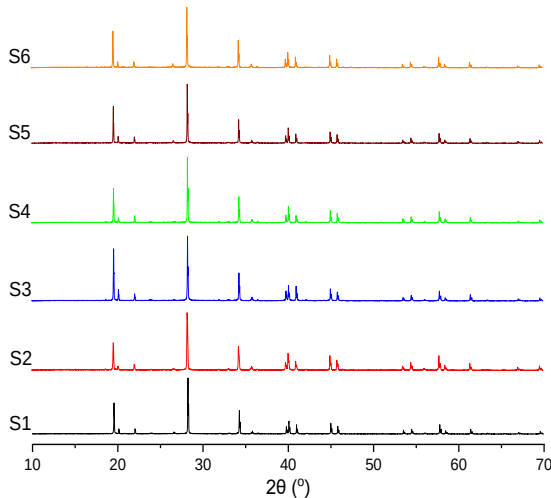
mịn và tiến hành thực hiện các phép đo ở nhiệt độ phòng để nghiên cứu sự truyền năng lượng giữa Ce^{3+} và Tb^{3+} .

Bảng 1. Tỷ lệ tiền chất của các mẫu

Mẫu	Mô tả chi tiết
S0	$1BaCO_3:1Al_2O_3$
S1	$1BaCO_3:1Al_2O_3:0,01Tb_4O_7$
S2	$1BaCO_3:1Al_2O_3:0,005CeO_2$
S3	$1BaCO_3:1Al_2O_3:0,01Tb_4O_7:0,005CeO_2$
S4	$1BaCO_3:1Al_2O_3:0,01Tb_4O_7:0,010CeO_2$
S5	$1BaCO_3:1Al_2O_3:0,01Tb_4O_7:0,015CeO_2$
S6	$1BaCO_3:1Al_2O_3:0,01Tb_4O_7:0,020CeO_2$

Cấu trúc tinh thể của các vật liệu được nghiên cứu bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD) trên máy nhiễu xạ D8-Advance Eco của hãng Bruker sử dụng nguồn phát xạ $Cu-K_\alpha$ ($\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$). Hình thái học bề mặt và thành phần hóa học của vật liệu được nghiên cứu bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM) và phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) trên thiết bị JSM-IT200 của hãng JEOL. Các tính chất phát quang của vật liệu được nghiên cứu thông qua các phổ phát quang (PL) và phổ kích thích (PLE) thu được từ máy FL3-22 của hãng Horiba. Các phép đo đều được đo và thực hiện tại các phòng thí nghiệm thuộc Trung tâm Tính toán hiệu năng cao và Khoa học vật liệu của Khoa Vật lý, Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng.

3. Kết quả và thảo luận



Hình 1. Giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu

Giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu đã được tổng hợp và được mô tả trong Hình 1. Tất cả các đỉnh nhiễu xạ đều phù hợp với thẻ chuẩn PDF 00-017-0306 của vật liệu $BaAl_2O_4$, một số đỉnh đặc trưng như $19,61^\circ$; $28,28^\circ$; $34,31^\circ$ lần lượt thuộc các mặt (200); (202); (220).

Kết quả thu được cho thấy, tất cả các vật liệu đều đơn pha, có cấu trúc lục giác thuộc nhóm đối xứng $P6322$ với các hằng số mạng $a \approx 10,420 \text{ \AA}$, $c \approx 8,780 \text{ \AA}$. Ngoài ra, kích thước tinh thể trung bình D của vật liệu cũng được xác định dựa trên độ bán rộng (FWHM) của các đỉnh $19,61^\circ$; $28,28^\circ$; $34,31^\circ$ và sử dụng phương trình Scherrer [12]:

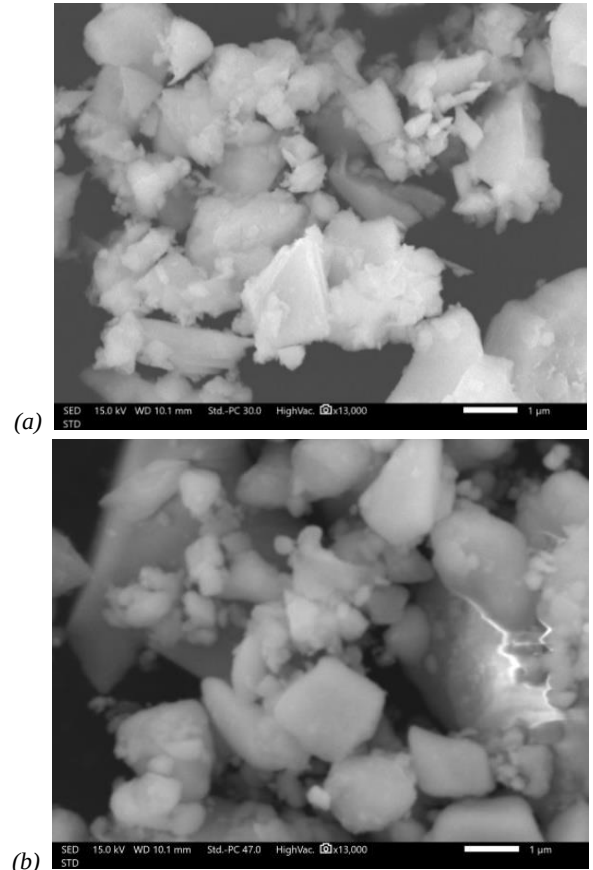
$$D = 0,9\lambda/\beta\cos\theta$$

Với, $\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$ là bước sóng của tia X; β và θ lần lượt là FWHM và vị trí đỉnh tương ứng.

Bảng 2. Kích thước tinh thể của các vật liệu được tổng hợp (đơn vị: nm)

Mẫu	Các mặt mạng			Trung bình
	200	202	220	
S1	158	163	160	160,33
S2	155	157	166	159,33
S3	161	157	166	161,33
S4	161	161	166	162,67
S5	158	157	166	160,33
S6	144	152	157	151

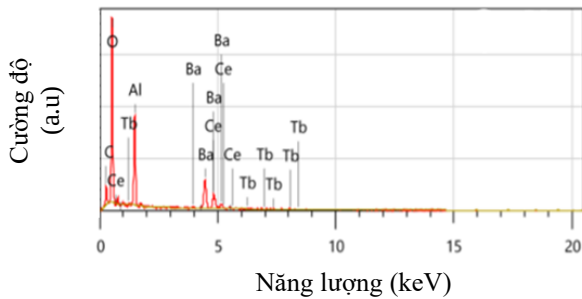
Từ số liệu ở Bảng 2 cho thấy, kích thước tinh thể trung bình nằm trong khoảng từ 150 đến 160 nm.



Hình 2. Ảnh chụp kính hiển vi điện tử quét (SEM) (a): mẫu S0; (b): mẫu S6

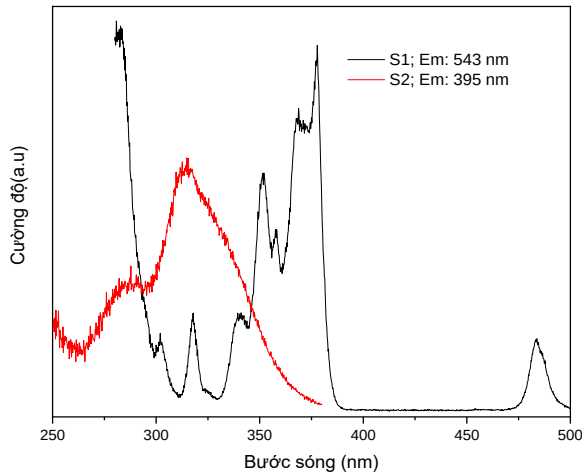
Các Hình 2a và 2b mô tả kết quả chụp ảnh kính hiển vi điện tử quét (SEM) của mẫu S0 và mẫu S6. Các hình ảnh SEM phản ánh sự không đồng nhất về hình dạng và kích thước của các hạt trong các vật liệu đã tổng hợp. Các kết quả SEM cùng với kích thước tinh thể trung bình đã chỉ ra rằng tất cả vật liệu được tổng hợp đều ở dạng đa tinh thể khối. Hơn nữa, hình ảnh SEM của cả mẫu S0 và S6 đều tương đồng. Điều này chứng tỏ việc pha tạp Tb^{3+} và Ce^{3+} đã không thay đổi hình thái của các hạt $BaAl_2O_4$.

Hình 3 mô tả phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) của mẫu S6. Từ phân tích EDS, ta thấy sự xuất hiện của các nguyên tố Ba, Al, O. Tỷ lệ Ba:Al:O xấp xỉ 1:2:4 đúng với định dạng $BaAl_2O_4$ của vật liệu đã được chế tạo. Hơn nữa, các đỉnh của các nguyên tố Tb, Ce cũng được phát hiện. Kết quả phân tích EDS chỉ ra độ tinh khiết của vật liệu được tổng hợp.

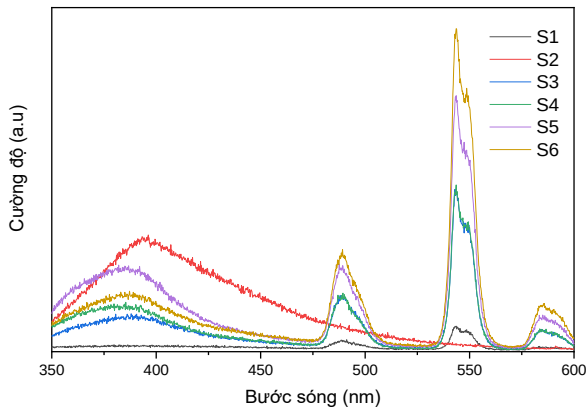


Hình 3. Phổ năng lượng tán xạ tia X (EDS) của mẫu S6

Phổ PLE của Tb^{3+} và Ce^{3+} trong nền $BaAl_2O_4$ được mô tả trong Hình 4. Phổ PLE của Tb^{3+} tại bước sóng phát quang 543 nm bao gồm một loạt các đỉnh tại các bước sóng 315 nm, 340 nm, 352 nm, 369 nm, 377 nm và 485 nm, lần lượt tương ứng với các chuyển dời điện tử từ 7F_6 lên 5D_1 , 5L_6 , 5D_2 , $^5L_{10}$, 5D_3 và 5D_4 [13]. Trong khi đó, phổ PLE của Ce^{3+} gồm 2 đám rộng với đỉnh tại các bước sóng 280 và 315 nm thuộc chuyển tiếp $4f^0 \rightarrow 5d^1$ [14]. Từ các phổ PLE trong Hình 4, ta thấy bước sóng 315 nm là tối ưu nhất để kích thích sự phát quang cho vật liệu $BaAl_2O_4$ đồng pha tạp Tb^{3+} ; Ce^{3+} . Việc làm trên đã được nhóm tác giả Z. G. Xia và R. S. Liu thực hiện trong nghiên cứu của mình [11].



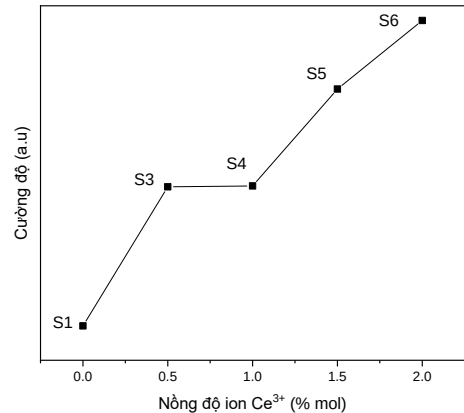
Hình 4. Phổ kích thích huỳnh quang của mẫu S1 và S2



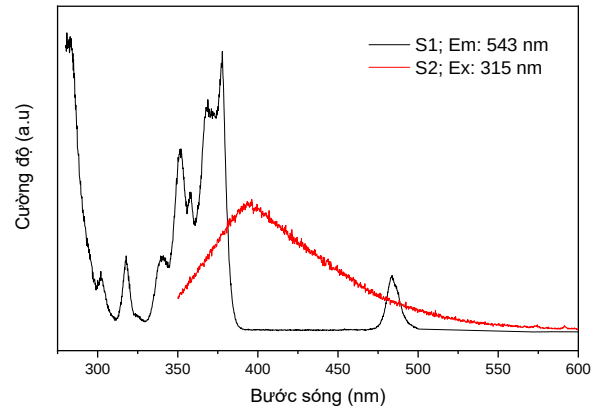
Hình 5. Phổ phát xạ huỳnh quang của các mẫu được chế tạo

Hình 5 mô tả phổ phát xạ huỳnh quang của các mẫu được chế tạo dưới sự kích thích của bước sóng 315 nm. Phổ phát quang của các vật liệu bao gồm một đám rộng trong khoảng từ ~350 nm đến ~430 nm của Ce^{3+} và các đỉnh tại 489 nm, 543 nm và 586 nm lần lượt ứng với các chuyển

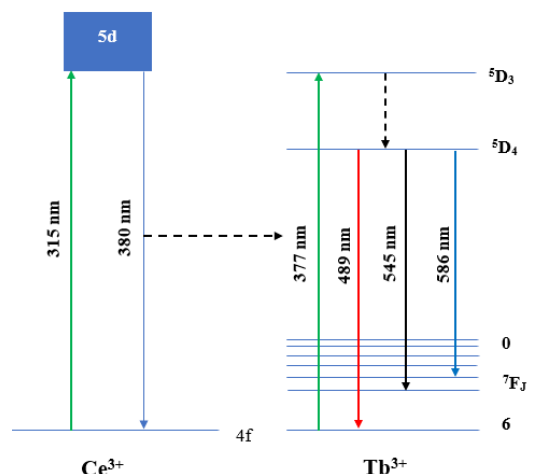
dời điện tử $^5D_4 \rightarrow ^7F_j$ ($j = 6, 5, 4$) của Tb^{3+} [13-15]. Cường độ phát xạ của ion Tb^{3+} trong mẫu đồng pha tạp (S3 đến S6) tăng lên đáng kể so với mẫu đơn pha tạp khi có cùng nồng độ (S1). Ngược lại, cường độ bức xạ đặc trưng của ion Ce^{3+} trong mẫu đồng pha tạp (S3) lại giảm đáng kể so với mẫu $BaAl_2O_4: Ce^{3+}$ có cùng nồng độ (S2). Đặc biệt khi tiếp tục tăng nồng độ của Ce^{3+} , cường độ phát quang của Tb^{3+} tăng (Hình 6) trong khi đó cường độ phát quang của Ce^{3+} giảm và vị trí bức xạ cực đại của ion Ce^{3+} và Tb^{3+} đều dường như không thay đổi. Kết quả này chứng tỏ có sự truyền năng lượng từ Ce^{3+} đến Tb^{3+} .



Hình 6. Sự phụ thuộc cường độ phát quang của Tb^{3+} theo nồng độ Ce^{3+}

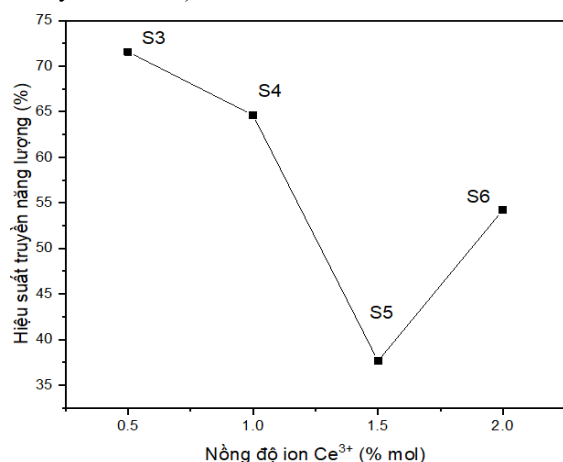


Hình 7a. Phổ PLE của mẫu S1 và phổ PL của mẫu S2



Hình 7b. Giản đồ mức năng lượng của Ce^{3+} và Tb^{3+}

Ngoài ra, để nhìn nhận rõ hơn quá trình truyền năng lượng, ta tiến hành chồng phổ PL của mẫu S2 và phổ PLE của mẫu S1 như mô tả ở Hình 7a. Từ Hình 7a ta thấy, phổ PLE của Tb^{3+} và phổ PL của Ce^{3+} trong vật liệu $BaAl_2O_4$ có một vùng chồng phủ lên nhau trong khoảng bước sóng từ ~ 350 đến ~ 377 nm. Điều này chứng tỏ, ngoài việc được kích thích để phát quang dưới bước sóng 315 nm của nguồn đèn Xenon, các ion Tb^{3+} còn được kích thích bởi các bức xạ có bước sóng nằm trong vùng từ ~ 350 đến ~ 377 nm do ion Ce^{3+} phát ra. Ngoài ra, nhóm tác giả đã xây dựng giản đồ các mức năng lượng của ion Ce^{3+} và Tb^{3+} trong vật liệu $BaAl_2O_4$ để giải thích quá trình truyền năng lượng (được trình bày ở Hình 7b).



Hình 8. Hiệu suất truyền năng lượng từ Ce^{3+} sang Tb^{3+} trong $BaAl_2O_4$ theo nồng độ ion Ce^{3+}

Hình 8 thể hiện hiệu suất truyền năng lượng từ tâm tăng nhạy (Ce^{3+}) đến tâm kích hoạt (Tb^{3+}) trong các mẫu (S3 – S6). Hiệu suất truyền năng lượng được tính toán theo phương trình [15]:

$$\eta_T = 1 - \frac{I_s}{I_{so}}$$

Trong đó, I_{so} và I_s là cường độ PL của tâm tăng nhạy (Ce^{3+}) khi không có và có tâm tăng kích hoạt (Tb^{3+}). Và được tính dựa trên diện tích của vùng phổ phát xạ Ce^{3+} trong phổ PL (mẫu S2 – S6).

Bảng 3. Hiệu suất truyền năng lượng giữa Ce^{3+} và Tb^{3+}

Mẫu	I_{so} (a.u)	I (a.u)	η_T (%)
S2	1822190		
S3		518049	71,57
S4		644537	64,63
S5		1136380	37,64
S6		834208	54,22

Từ số liệu tính toán chỉ ra rằng, ứng với mẫu S3 đạt giá trị hiệu suất truyền năng lượng cao nhất 71,57%.

4. Kết luận

Việc đồng pha tạp ion Ce^{3+} và Tb^{3+} vào trong mạng nền $BaAl_2O_4$ đã tăng cường hiệu suất phát quang của ion Tb^{3+} nhờ quá trình truyền năng lượng từ ion Ce^{3+} sang Tb^{3+} .

Việc truyền năng lượng từ ion Ce^{3+} sang Tb^{3+} là do phổ PLE của Tb^{3+} và phổ PL của Ce^{3+} trong vật liệu $BaAl_2O_4$ có một vùng chồng phủ lên nhau trong khoảng bước sóng từ ~ 350 đến ~ 377 nm. Cường độ phát quang của Tb^{3+} tăng trong khi cường độ phát quang của Ce^{3+} giảm khi tăng nồng độ Ce^{3+} . Đối với mẫu S3 có hiệu suất truyền năng lượng đạt 71,57%.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] L. Han, L. Zhao, J. Zhang, Y. Wang, L. Guo, "Structure and luminescence properties of the novel multifunctional $K_2Y(WO_4)(PO_4):Ln^{3+}$ ($Ln = Tb, Eu, Yb, Er, Tm$ and Ho) phosphors", *RSC Adv.* 3, 2013, 21824-21831.
- [2] B. Ratman, M. Jayasimhadri, G. Kumar, K. Jang, S. Kim, Y. Lee, J. Lim, D. Shin, T. Song, "Synthesis and luminescent features of $NaCaPO_4:Tb^{3+}$ green phosphor for near UV-based LEDs", *J. Alloy. Compd.* 564, 100-104, 2013.
- [3] X. Huang, D. Yu, Q. Zhang, "Enhanced near-infrared quantum cutting in phosphors by codoping", *J. Appl. Phys.* 106, 113521-113526, 2009.
- [4] Shaojun Sun, Li Wu, Huan Yi, Liwei Wu, Jingyuan Ji, Chunling Zhang, Yi Zhang, Yongfa Kong, and Jingjun Xu, "Energy transfer between Ce^{3+} and Tb^{3+} and the enhanced luminescence of a green phosphor $SrB_2O_4:Ce^{3+}, Tb^{3+}, Na^{+}$ ", *Optical Materials Express*, Vol. 6, No. 4, 1172-1185, 2016.
- [5] J. Zhou, Y. Teng, S. Ye, X. Liu, J. Qiu, "Broadband down-conversion spectral modification based on energy transfer", *Opt. Mater.* 33, 153-158, 2010.
- [6] Guifang Ju, Yihua Hu, Li Chen, Yanhong Jin, Zhongfu Yang and Tao Wang, "Photoluminescence properties of Ce^{3+} and Tb^{3+} - activated $Ba_2Mg(PO_4)_2$ ", *Optical Materials Express*, Vol. 5, No. 1, 2014, 1-10.
- [7] Ju Cheng, Jia Zhang, Jian Lu, Hongchao Zhang, Sardar Maryam, Zhonghua Shen, Xiaowu Ni, Xintian Bian, Pengcheng Ma, and Jin Shi, "Luminescence and energy transfer properties of color-tunable $Sr_4La(PO_4)_3O:Ce^{3+}, Tb^{3+}, Mn^{2+}$ phosphors for WLEDs", *Optical Materials Express*, Vol. 8, No. 7, 2018, 1850-1862.
- [8] M. Fasoli, A. Vedda, A. Lauria, F. Moretti, E. Rizzelli, N. Chiodini, F. Meinardi, M. Nikl, "Effect of reducing sintering atmosphere on Ce-doped sol-gel silica glasses", *J. Non-Cryst. Solids* 355, 2009, 1140.
- [9] J. M. Ogieglo, A. Zych, K. V. Ivanovskikh, T. Jüstel, C. R. Ronda, and A. Meijerink, "Luminescence and energy transfer in $Lu_3Al_5O_{12}$ scintillators co-doped with Ce^{3+} and Tb^{3+} ", *J. Phys. Chem. A* 116(33), 2012, 8464-8474.
- [10] X. Z. Qin, X. G. Zhang, P. He, Q. Pang, L. Y. Zhou, and M. L. Gong, "Enhanced luminescence properties and energy transfer in Ce^{3+} and Tb^{3+} co-doped $NaCaBO_3$ phosphor", *Ceram. Int.* 41(4), 2015, 5554-5560.
- [11] Z. G. Xia and R. S. Liu, "Tunable blue-green color emission and energy transfer of $Ca_2Al_3O_6F:Ce^{3+}, Tb^{3+}$ phosphors for near-UV white LEDs", *J. Phys. Chem. C* 116(29), 2012, 15604-15609.
- [12] P. Scherrer, *Göttinger Nachrichten Gesell.*, Vol.2, 1918, P98.
- [13] K. Naveen Kumar, R. Padma, Y.C. Ratnakaram and Misook Kang, "Bright green emission from f-MWCNT embedded co-doped $Bi^{3+} + Tb^{3+}$: polyvinyl alcohol polymer nanocomposites for photonic applications", *Royal Society of Chemistry*, 7, 2017, J15084-15095.
- [14] Shi Ye, Xiao-Ming Wang, and Xi-Ping Jing, "Energy Transfer among Ce^{3+} , Eu^{2+} , and Mn^{2+} in $CaSiO_3$ ", *Journal of The Electrochemical Society*, 155(6), 2008, J143-147.
- [15] Mengfei Zhang, Yujun Liang, Zhanggen Xia, Fan Yang, Dongyan Yu, Gougang Li, "Luminescence properties and energy transfer of a novel bluish-green tunable $NaBa_4(BO_3)_3:Ce^{3+}, Tb^{3+}$ phosphor", *Materials Research Bulletin*, 48, 2013, 4749-4753.