

# 制备温度对 $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ 荧光粉三元相图及色像图的影响研究

高明远<sup>1</sup>, 罗 岚<sup>1, 2\*</sup>, 郭 锐<sup>1</sup>, 汪 雨<sup>1</sup>, 张澎鹏<sup>1</sup>

1. 南昌大学材料科学与工程学院, 江西 南昌 330031

2. 南昌大学江西省轻质高强结构材料重点实验室, 江西 南昌 330031

**摘 要** 采用高温固相法分别在 1 150, 1 200 和 1 250 °C 制备  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  荧光粉系列样品, 通过 XRD、PL 和紫外发光照相记录, 建立起组分-物相-色像对应关系, 推导得到其三元色像图, 并探讨制备温度对物相及色像影响。物相分析表明:  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  荧光粉物相组成与组分间存在渐变性, 从单组分出发物相组成数目逐渐增多且各物相含量连续变化, 在富  $\text{Ba}^{2+}$  端形成  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相相区; 随着温度升高,  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区扩大 ( $\text{Mg}^{2+}$  ( $\text{Sr}^{2+}$ ) 在 1 150, 1 200 和 1 250 °C 固溶度为 20<sub>at</sub>% (30<sub>at</sub>%), 30<sub>at</sub>% (35<sub>at</sub>%), 35<sub>at</sub>% (40<sub>at</sub>%)), 混合相区同一组分物相组元数减少 (若该组分点包含  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相则其含量增加)。光谱分析表明: 同一样品在 365 nm 激发下比 254 nm 激发下绿光波段荧光发射强但红光波段发射弱; 荧光颜色和亮度也随组分、相组成呈渐变性,  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区为绿色荧光且随  $\text{Sr}^{2+}$  和  $\text{Mg}^{2+}$  固溶荧光亮度提高, 在混合相区随着  $\text{Ba}^{2+}$  含量减少荧光颜色由绿变红, 红光区域随着  $\text{Mg}^{2+}$  减少亮度逐渐减弱 [如:  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}$  系列随  $y$  增大由亮红变成暗红]; 随着温度升高,  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区内荧光粉亮度整体提高且最亮荧光粉组分中  $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{Sr}^{2+}$  固溶度提高; 混合相区荧光强度整体提高, 且绿色荧光粉组分区域增大 (如: 在 254 nm 激发下,  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  系列由红色变成绿色时  $x_{1150\text{ °C}} = 0.5$ ,  $x_{1200\text{ °C}} = 0.4$ ,  $x_{1250\text{ °C}} = 0.3$ ,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  系列由绿色变成红色时  $y_{1150\text{ °C}} = 0.6$ ,  $y_{1200\text{ °C}} = 0.7$ ,  $y_{1250\text{ °C}} = 0.8$ ,  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  系列由红色变成绿色时  $x_{1150\text{ °C}} = 0.5$ ,  $x_{1200\text{ °C}} = 0.4$ ,  $x_{1250\text{ °C}} = 0.3$ )。研究建立了  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  粉体组分-结构(相)-制备(温度)-性能(荧光)对应关系; 优选出  $(\text{Mg}_{0.35}\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}/(\text{Mg}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  等高效绿色/红色荧光粉; 发现单相比混合相绿色荧光粉亮度高, 固溶度提高有利于  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相绿色荧光粉效率的提高; 温度提高扩大了  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相荧光粉、混合相区绿色荧光粉区域, 且提高  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  荧光粉整体亮度。由  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  系列荧光粉得出的色像随组分、温度渐变规律可应用于其他组元荧光粉优选, 对新发光材料的系统开发具有一定指导意义。

**关键词** 相图; 荧光; 煅烧温度; 碱土正硅酸盐

**中图分类号**: TB332

**文献标识码**: A

**DOI**: 10.3964/j.issn.1000-0593(2021)02-0460-07

## 引 言

硅酸盐具有良好的物理、化学稳定性, 原料广泛, 是一类重要的发光基体材料<sup>[1]</sup>。稀土掺杂后, 利用基体固溶<sup>[2-5]</sup>、调节煅烧温度<sup>[6-11]</sup>可实现物相控制进而调控光谱(不同种类

激发源、不同波段激发、不同颜色荧光发射)。利用固溶如:  $\text{Sr}_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}^{2+}$  中固溶  $\text{Ba}^{2+}$  可以实现黄绿光渐变为绿光的发射光谱( $\text{Ba}^{2+}$  可提高  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相稳定性, 随着  $\text{Ba}^{2+}$  含量提高还可能形成  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相<sup>[2]</sup>); 单相  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4 : (\text{Eu}^{3+}, \text{F}^-)$  中固溶 10<sub>at</sub>%  $\text{Sr}^{2+}$  红色荧光亮度明显提高<sup>[3]</sup>;  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}^{2+}$  固溶 46<sub>at</sub>%  $\text{Sr}^{2+}$ <sup>[2]</sup>, 30<sub>at</sub>%  $\text{Mg}^{2+}$ <sup>[4]</sup> 和 10<sub>at</sub>%  $\text{Ca}^{2+}$ <sup>[5]</sup> 可以

收稿日期: 2020-01-16, 修订日期: 2020-04-30

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFB0701203, 2016YFB0701201, 2017YFB1103701), 国家自然科学基金项目(11564025, 51671101), 南昌大学双创及科研训练基金项目(20190402352, 2019-3910, 2020-4469)资助

作者简介: 高明远, 1998 年生, 南昌大学材料科学与工程学院本硕连读生 e-mail: 1206861141@qq.com

\* 通讯作者 e-mail: luolan1190@163.com, luolan1190@sina.com.cn

使得光谱略微红移,且发光亮度和光谱温度稳定性提高。调节煅烧温度如:  $\text{Ca}_2\text{SiO}_4$  随着温度升高可发生三斜  $\alpha\text{-Ca}_2\text{SiO}_4 \rightarrow$  正交  $\alpha\text{-Ca}_2\text{SiO}_4 (\alpha_H, \alpha_L) \rightarrow$  单斜  $\beta\text{-Ca}_2\text{SiO}_4 (\beta_H, \beta_L) \rightarrow$  正交  $\gamma\text{-Ca}_2\text{SiO}_4$  五种晶型转变<sup>[6]</sup>;  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相随反应温度升高向  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相转变,进一步升高温度则转变为  $\text{Sr}_3\text{SiO}_5$ <sup>[7]</sup>;  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7 : \text{Eu}^{2+}, \text{Tm}^{3+}$  在 1 300 °C 由混合相转变为  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7$  单相<sup>[8]</sup>。此外,即使不发生相变,荧光发射光谱也随着合成温度而发生变化,如  $\text{Sr}_2\text{SiO}_4 : \text{Eu}^{2+}$ <sup>[9]</sup>,  $\text{BaCa}_2\text{Mg}(\text{SiO}_4)_2 : \text{Eu}^{2+}$ <sup>[10]</sup>,  $\text{Ca}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7 : \text{Eu}^{2+}, \text{Tm}^{3+}$ <sup>[8]</sup> 随着合成温度升高荧光强度明显增大;  $\text{Ba}_{1.2}\text{Ca}_{0.64}\text{SiO}_4 : \text{Eu}^{2+}, \text{Mn}^{2+}$  蓝绿光发射随煅烧温度升高先增大后减小且伴随着最大发射峰红移<sup>[11]</sup>。本文采用高温固相法在不同温度制备  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  荧光粉系列样品,通过 XRD 和紫外发光照相记录,建立起组分-物相-色像对应关系,推导得到三元色像图;探讨制备温度对其物相和色像的影响,探明发光性能随组分、物相、制备温度的演变规律,优选出多元体系中最佳绿色和红色荧光组成及对应合成条件,提出系统

性开发发光材料的一种策略。

## 1 实验部分

### 1.1 $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ 粉体制备

采用高温固相法在 1 150, 1 200 和 1 250 °C 制备  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  系列荧光粉,其中包括 3 个二元系列(即  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_2\text{SiO}_4$ ,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  和  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$ ) 3 个三元系列( $(\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.8-x})_2\text{SiO}_4$ ,  $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.4-x})_2\text{SiO}_4$ ,  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_2\text{SiO}_4$ )、及若干散点样品,如图 1 所示。其制备过程为:按照化学计量比称量  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{MgCO}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ (天津市大茂化学试剂厂,分析纯)和  $\text{Eu}_2\text{O}_3$  等原料,加入  $\text{BaF}_2$ (0.7 Wt%)和碳粉(3 Wt%),球磨混合 3 h 以上;以  $20\text{ °C} \cdot \text{min}^{-1}$  升温到煅烧温度(1 150, 1 200 和 1 250 °C)并保温 3 h,随炉冷却研磨得到对应粉末样品。

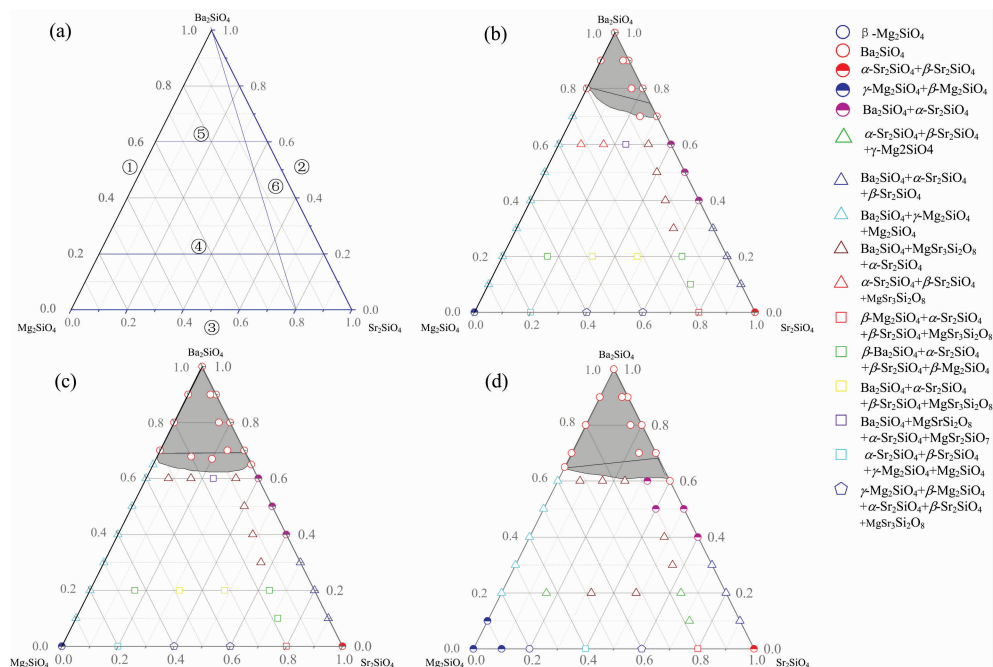


图 1  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  粉体 (a) 样品设计图, (b) 1150 °C, (c) 1 200 °C, (d) 1 250 °C 相图

圆形标注单相,半填充圆形为双相,三角形为三相,方形为四相,五边形为五相,

相同形状不同颜色代表相数目相同但组成不同

Fig. 1  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  (a) composition design and phase diagram for (b) 1 150 °C, (c) 1 200 °C, (d) 1 250 °C

The phase constitutions for the composition point is marked with different geometric figure, as circle for single-phase, semicircle for binary-phase, triangle for ternary-phase, square for quaternary-phase, pentagon for five-phase, the same shape but with different color stands for same in phase numbers but different in phase constitutions

### 1.2 结构和性能表征

采用 PANalytical X 射线衍射仪 ( $\text{Cu-K}_\alpha$  源,  $2\theta = 10^\circ \sim 90^\circ$ , 步长  $0.001^\circ$ , 步宽  $0.001^\circ$ , 滞留时间 1 s) 进行粉末物相组成分析 (XRD, X-ray diffraction)。

采用 WFH-203B 型三用紫外分析仪对样品的荧光发射

进行观察,并利用数码相机进行拍摄,记录 254 和 365 nm 激发下样品发光状态。选用 PE 公司的 FS F-4500 荧光光谱仪 (光源 150 W 氙灯,扫描速度  $15\text{ nm} \cdot \text{min}^{-1}$ , 波长范围  $200 \sim 750\text{ nm}$ ,  $E_x$  狭缝  $2.5\text{ nm}$ ,  $E_m$  狭缝  $1.0\text{ nm}$ ) 对样品进行光谱分析 (PL, Photoluminescence spectrum)。

## 2 结果与讨论

### 2.1 结构分析

不同温度得到  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  粉末物相组成如图 1 (b, c, d) 所示, 涉及物相有  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\text{MgSr}_3\text{Si}_2\text{O}_8$ ,  $\text{MgBa}_3\text{Si}_2\text{O}_8$ ,  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$

等, 物相信息如表 1 所示。Eu 离子掺杂后, 以取代碱土离子的方式进入晶格<sup>[2-5]</sup>, 当 Mg 离子配位数较少时其对应位点的空间也较小(如:  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{MgSr}_3\text{Si}_2\text{O}_8$  中), Eu 离子倾向形成小半径的  $\text{Eu}^{3+}$  (0.095 nm); 而位点空间较大(如:  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  中)时则倾向形成大半径的  $\text{Eu}^{2+}$  (0.135 nm)。

表 1  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  粉末中物相结构信息  
Table 1 Crystal data for phases in  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  powder

Phase	Space group	Crystal system	Coordination	Spatial location of $\text{Me}^{2+}$	Radius of $\text{Me}^{2+}$ /nm
$\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ <sup>[12]</sup>	Pbnm	Orthorhombic	6	4e	0.072 0
$\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ <sup>[12]</sup>	Fd-3m	Cubic	4, 6	8a( I ), 16d( II )	0.0720
$\text{MgSr}_3\text{Si}_2\text{O}_8$ <sup>[13]</sup>	P121/a1	Monoclinic	6 ( $\text{Mg}^{2+}$ ), 8 ( $\text{Sr}^{2+}$ )	4e( $\text{Mg}^{2+}$ ), 4e( $\text{Sr}^{2+}$ )	0.072 0, 0.126 0
$\text{MgBa}_3\text{Si}_2\text{O}_8$ <sup>[14]</sup>	P-3	Trigonal	12Ba( I ), 10Ba( II )	1b, 2d	0.175 0, 0.166 0
$\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ <sup>[15]</sup>	Pmnb	Orthorhombic	10( I ), 9( II )	8d	0.131 0
$\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ <sup>[16]</sup>	P121/n1	Monoclinic	10( I ), 9( II )	4e	0.131 0
$\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ <sup>[17]</sup>	Pmcn	Orthorhombic	10( I ), 9( II )	4c	0.152 0, 0.147 0

由 1 200 °C  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4$  物相分析可知:  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Ba}_x)_2\text{SiO}_4$  系列(图 1c①)  $x=0$  为  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  相,  $0 < x < 0.7$  转变为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  相,  $x \geq 0.7$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相;  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列(图 1c②)  $y \leq 0.35$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相,  $0.35 < y \leq 0.6$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相,  $0.6 < y \leq 0.9$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相,  $y=1$  为  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相;  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列(图 1c③)  $y=0$  为  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  相,  $0.2 \leq y \leq 0.6$  为  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{Sr}_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$  相,  $y=0.8$  为  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{Sr}_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$  相,  $y=1$  为  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相;  $(\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.8-x})_2\text{SiO}_4$  系列(图 1c④)  $0.32 \leq x \leq 0.48$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{Sr}_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$  相,  $0.64 \leq x < 0.8$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  相,  $x=0.8$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相;  $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.4-x})_2\text{SiO}_4$  系列(图 1c⑤)  $x=0$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  和  $\gamma\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  相,  $0.08 \leq x \leq 0.16$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\text{Sr}_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$  和  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相,  $0.24 \leq x < 0.32$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\text{SrMgSi}_2\text{O}_8$  和  $\text{Sr}_2\text{MgSi}_2\text{O}_8$  相,  $0.32 \leq x < 0.4$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\text{Sr}_3\text{MgSi}_2\text{O}_8$  和  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相,  $x=0.4$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  和  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  相;  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_2\text{SiO}_4$  系列(图 1c⑥)  $x=0$  为  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{MgSr}_3\text{Si}_2\text{O}_8$  相,  $0 < x \leq 0.2$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\beta\text{-Mg}_2\text{SiO}_4$  相,  $0.3 \leq x \leq 0.5$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$  和  $\text{MgSr}_3\text{Si}_2\text{O}_8$  相,  $x=0.6$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ ,  $\alpha\text{-Sr}_2\text{SiO}_4$ ,  $\text{SrMgSi}_2\text{O}_8$  和  $\text{Sr}_2\text{MgSi}_2\text{O}_8$  相,  $x \geq 0.7$  为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相; 此外, 结合散点  $(\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.35})_{1.95}\text{SiO}_4$ : 0.05Eu,  $(\text{Mg}_{0.35}\text{Ba}_{0.65})_{1.95}\text{SiO}_4$ : 0.05Eu,  $(\text{Ba}_{0.68}\text{Sr}_{0.12}\text{Mg}_{0.2})_{1.95}\text{SiO}_4$ : 0.05Eu 和  $(\text{Ba}_{0.67}\text{Mg}_{0.13}\text{Sr}_{0.2})_{1.95}\text{SiO}_4$ : 0.05Eu(均为  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相)可知其  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相单相区[如图 1 (b) 灰色区域所示, 其  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  固溶度分别为 30<sub>at</sub>% 和 35<sub>at</sub>%]。由此可见混合相区随组元含量变化存在渐变性, 即

从组分端点  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ (单相)、 $\text{Sr}_2\text{SiO}_4$ (双相)、 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ (双相)出发到中心附近, 其粉末物相组成数目逐渐增多, 且物相组元含量呈连续变化。这主要是等价碱土离子均在对应碱土离子硅酸盐中有一定的固溶度所致, 如  $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{Sr}^{2+}$  固溶体在  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相形成在富  $\text{Ba}^{2+}$  端单相区。

综合物相分析结果可知: 随着温度的升高  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区扩大( $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{Sr}^{2+}$  的固溶度随温度增加所致); 且混合相区同一组分相组元数不变或逐渐减少。

### 2.2 光谱分析

$(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  荧光粉紫外激发 (254 nm/365 nm) 发光照相记录如表 3 所示。由表可见 1 150 °C 下, 254 nm 激发下  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_2\text{SiO}_4$  系列  $x \leq 0.5$  为红色荧光粉,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列  $y > 0.6$  为红色荧光粉,  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列随  $y$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.8-x})_2\text{SiO}_4$  系列随  $x$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.4-x})_2\text{SiO}_4$  系列  $x > 0.32$  为绿色,  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_2\text{SiO}_4$  系列  $x < 0.5$  为红色; 365 nm 激发下  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_2\text{SiO}_4$  系列  $x \leq 0.4$  为红色荧光粉,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列  $y > 0.5$  为红色荧光粉,  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列随  $y$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.8-x})_2\text{SiO}_4$  系列随  $x$  增大由红色变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.4-x})_2\text{SiO}_4$  系列  $x > 0.32$  为绿色,  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_2\text{SiO}_4$  系列  $x < 0.3$  为红色。1 200 °C 下, 254 nm 激发下  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_2\text{SiO}_4$  系列  $x \leq 0.4$  为红色荧光粉,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列  $y > 0.7$  为红色荧光粉,  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列随  $y$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.8-x})_2\text{SiO}_4$  系列随  $x$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.4-x})_2\text{SiO}_4$  系列随  $x$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_2\text{SiO}_4$  系列  $x < 0.4$  为红色; 365 nm 激发下  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_2\text{SiO}_4$  系列  $x \leq 0.3$  为红色荧光粉,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列  $y > 0.6$  为红色荧光粉,  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  系列随  $x$  增大由亮红变成暗红,  $(\text{Ba}_{0.2}\text{Sr}_x\text{Mg}_{0.8-x})_2\text{SiO}_4$  系列随  $y$  增大由红



表 3 (Mg<sub>1-x-y</sub>Ba<sub>x</sub>Sr<sub>y</sub>)<sub>1.95</sub>SiO<sub>4</sub> : 0.05Eu 系列荧光粉紫外激发发光照相记录  
Table 3 Photographs of (Mg<sub>1-x-y</sub>Ba<sub>x</sub>Sr<sub>y</sub>)<sub>1.95</sub>SiO<sub>4</sub> : 0.05Eu under UV light excitation

Composition	1 150 °C		1 200 °C		1 250 °C	
	254 nm	365 nm	254 nm	365 nm	254 nm	365 nm
(Mg <sub>1-x</sub> Ba <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> (x=0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1, x <sub>added</sub> =(0.65) <sub>1 200 °C, 1 250 °C</sub> )						
(Ba <sub>1-y</sub> Sr <sub>y</sub> ) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> (y=0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1, y <sub>added</sub> =(0.35) <sub>1 200 °C</sub> )						
(Mg <sub>1-y</sub> Sr <sub>y</sub> ) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> (y=0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1, y <sub>added</sub> =(0.1) <sub>1 250 °C</sub> )						
(Ba <sub>0.2</sub> Sr <sub>x</sub> Mg <sub>0.8-x</sub> ) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> (x=0, 0.16, 0.32, 0.48, 0.64, 0.8)						
(Ba <sub>0.6</sub> Sr <sub>x</sub> Mg <sub>0.4-x</sub> ) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> (x=0, 0.08, 0.16, 0.24, 0.32, 0.4)						
(Ba <sub>x</sub> (Mg <sub>0.2</sub> Sr <sub>0.8</sub> ) <sub>1-x</sub> ) <sub>2</sub> SiO <sub>4</sub> (x=0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1)						

Note: \* The intensity of all the phosphors emission increases, and the green phosphor region became larger as not only for Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>-phase region but also green phosphor in the mixture region, when the fabrication temperature is increased

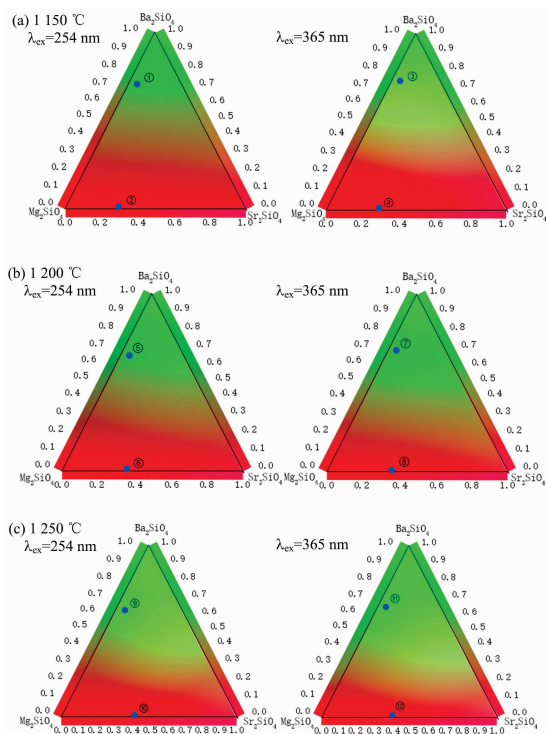


图 2 (Mg<sub>1-x-y</sub>Ba<sub>x</sub>Sr<sub>y</sub>)<sub>1.95</sub>SiO<sub>4</sub> : 0.05Eu 紫外激发下三元色像图

(a): 1 150 °C; (b): 1 200 °C; (c): 1 250 °C

Fig. 2 Ternary color diagram of (Mg<sub>1-x-y</sub>Ba<sub>x</sub>Sr<sub>y</sub>)<sub>1.95</sub>SiO<sub>4</sub> : 0.05Eu under UV light excitation

(a): 1 150 °C; (b): 1 200 °C; (c): 1 250 °C

(Ba<sub>x</sub>(Mg<sub>0.2</sub>Sr<sub>0.8</sub>)<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 系列 x<0.2 为红色。

由此可见，荧光粉紫外激发颜色也随组分呈现渐变性。在 Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 单相区为绿色荧光发射，随 Sr<sup>2+</sup> 和 Mg<sup>2+</sup> 固溶度提高发射强度提高(这是因为 Sr<sup>2+</sup>[2] 和 Mg<sup>2+</sup>[4] 固溶促进 Eu<sup>2+</sup> 进入高发光效率的格位且提高粉末的结晶度); 在混合相区随着 Ba 含量减少荧光颜色由绿变红(由 2.1 节分析结果可知，随着 Ba<sup>2+</sup> 减少 Eu 离子配位空间较大 α-Sr<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 和 Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 等相含量减少，而 γ-Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>、β-Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 和 MgSr<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 相增多，此时形成大半径的 Eu<sup>2+</sup> 倾向减弱)。

随着温度升高，Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 单相区扩大，且绿光发射强度整体提高，混合相区随着 Ba 含量减少荧光由绿到红渐变速度减慢(如：二元组分(Mg<sub>1-x</sub>Ba<sub>x</sub>)<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 系列 x≤0.5, 0.4 和 0.3 为红色荧光粉，三元(Ba<sub>x</sub>(Mg<sub>0.2</sub>Sr<sub>0.8</sub>)<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 系列 x≤0.3, 0.2 和 0.2 为红色荧光粉)。可见温度对于发光性能产生影响的原因为：Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 单相区绿色荧光粉随着温度升高其固溶度进一步增加(单相区扩大)使得荧光亮度增强；而混合相区随着温度升高 α-Sr<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>、Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 相更稳定且含量增加，因而随着 Ba<sup>2+</sup> 减少由绿到红渐变趋势减弱。

根据实验数据推导出不同温度的三元发光色像图如图 2 所示。从富 Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 端向 Sr<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 和 Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 端荧光粉颜色逐渐由绿变红，且沿着 Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> → Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 比 Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> → Sr<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 变化要快；随着温度升高，绿光范围扩大(由 Ba<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 单相区扩大、混合相区荧光的绿到红渐变趋势减弱造成)，此外荧光粉的亮度普遍升高。由三元色像图可以优选出各温度条件下最佳荧光组分如表 4 所示，不同温度下最

佳绿粉组分点均落在  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区、最佳红粉组分点落在  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_2\text{SiO}_4$  二元系列混合物区；随着温度升高，绿粉

中  $\text{Sr}^{2+}/\text{Mg}^{2+}$  含量、红粉中  $\text{Sr}^{2+}$  含量增大，且荧光粉整体亮度增大。

表 4  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  系列荧光粉发光中心与量子效率  
Table 4 Emission center and quantum efficiency of  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  phosphors

Temperature / $^{\circ}\text{C}$	Composition	Under 254 nm excitation		Under 365 nm excitation	
		Emission center/nm	Quantum efficiency/%	Emission center/nm	Quantum efficiency/%
1 150	$(\text{Mg}_{0.25}\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$	504+3	63	510±5	65
	$(\text{Mg}_{0.7}\text{Sr}_{0.3})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$	653±1	81	652±2	83
1 200	$(\text{Mg}_{0.3}\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$	505+5	66	511±6	68
	$(\text{Mg}_{0.65}\text{Sr}_{0.35})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$	655±1	84	655±2	86
1 250	$(\text{Mg}_{0.35}\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$	507+6	70	513±5	73
	$(\text{Mg}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$	657±1	88	656±2	90

### 3 结 论

采用高温固相法分别在 1 150, 1 200 和 1 250  $^{\circ}\text{C}$  合成温度下制备  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  荧光粉，通过物相分析和紫外发光照相记录研究其物相组成和光谱性能，并建立了三元色像图。探讨了温度对  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  荧光粉物相组成、荧光颜色/亮度与影响规律。

从单组分出发物相组成数目逐渐增多且各物相含量连续变化；随着温度的升高， $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区扩大（这主要是  $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{Sr}^{2+}$  的固溶度随温度增加， $\text{Mg}^{2+}$  ( $\text{Sr}^{2+}$ ) 在 1 150, 1 200 和 1 250  $^{\circ}\text{C}$  固溶度为 20<sub>at</sub>% (30<sub>at</sub>%), 30<sub>at</sub>% (35<sub>at</sub>%) 和 35<sub>at</sub>% (40<sub>at</sub>%)，且处于混合物区的组分点相组成数目不变或逐渐减少。 $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  相区为绿色荧光发射且随  $\text{Sr}^{2+}$  和

$\text{Mg}^{2+}$  固溶度提高发射亮度提高；在混合相区随着  $\text{Ba}^{2+}$  含量减少荧光粉末由绿变红；随着温度升高， $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  单相区绿光发射强度整体提高且其对应的最亮绿色荧光粉  $\text{Sr}^{2+}$  和  $\text{Mg}^{2+}$  固溶度提高 ( $(\text{Mg}_{0.25}\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ )，QE = 0.65, 1 150  $^{\circ}\text{C}$  →  $(\text{Mg}_{0.3}\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ , QE = 0.68, 1 200  $^{\circ}\text{C}$  →  $(\text{Mg}_{0.3}\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ , QE = 0.83, 1 250  $^{\circ}\text{C}$ ) 混合相区荧光随着  $\text{Ba}^{2+}$  含量降低由绿到红渐变速度减弱。

基于上述研究可以建立  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  不同温度的三元色像；同时发现温度提高可扩大该系列的绿色荧光粉组分区域和全系列荧光粉亮度，最亮绿色荧光粉始终为单相且对应最高固溶度的组分点。由该系列荧光粉荧光颜色和亮度随温度渐变规律可应用于其他系列荧光粉优选，对新发光材料系统开发具有一定指导意义。

### References

- [1] PAN Zheng-wei, HE Hong, SONG Xiu-feng, et al (潘政薇, 何洪, 宋秀峰, 等). Journal of the Chinese Ceramic Society(硅酸盐学报), 2009, 37(9): 1590.
- [2] Denault K A, Brgoch J, Gaultois M W, et al. Chem. Mater., 2014, 26(7): 2275.
- [3] WANG Yu, LUO Lan, GUO Rui, et al (汪雨, 罗岚, 郭锐, 等). Chinese Journal of Luminescence(发光学报), 2019, 40(9): 1086.
- [4] Wang Yu, Luo Lan, Guo Rui, et al. Materials Research Express, 2019, 6(11): 116201.
- [5] GAO Ming-yuan, LUO Lan, WANG Yu, et al (高明远, 罗岚, 汪雨, 等). Journal of the Chinese Ceramic Society(硅酸盐学报), 2020, 48(2): 204.
- [6] Cruz R T D, Saulo R Braganca. Ceramics International, 2015, 41(3): 4775.
- [7] Fei M, Tian Y F, Zhang Z, et al. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 728, 231.
- [8] Cao Hong, Liu Miao, Chen Hang. Physica B: Condensed Matter, 2019, 571, 243.
- [9] JIANG Hong-yi, HU Dan, JI Tong-kun (姜洪义, 胡丹, 姬同坤). Journal of the Chinese Ceramic Society(硅酸盐学报), 2010, (3): 446.
- [10] CHEN Yong-jie, LI Lang-kai, XIAO Lin-jiu, et al (陈永杰, 李郎楷, 肖林久, 等). Journal of the Chinese Ceramic Society(硅酸盐学报), 2011, (6): 908.
- [11] LI Xiang-qi, ZHANG Yi (李湘祁, 张懿). Chinese Journal of Luminescence(发光学报), 2014, 35(6): 643.
- [12] Ashbrook S E, Berry A J, Hibberson W O, et al. American Mineralogist, 2005, 90(11-12): 1861.
- [13] Li J, Deng J C, Lu Q F, et al. Optoelectronics Letters, 2013, 9(4): 293.
- [14] Park C H, Hong S T, Keszler D A. Journal of Solid State Chemistry, 2009, 182(3): 496.

- [15] Nag A, Kuty T R N. *Journal of Materials Chemistry*, 2004, 14(10): 1598.  
 [16] Li X J, Hua Y J, Ma H P, et al. *RSC Advances*, 2015, 5(77): 62659.  
 [17] Fields J M, Dear P S, Brown J J. *Journal of the American Ceramic Society*, 1972, 55(12): 585.

## Temperature Dependence of Phase and Color Diagram for Ternary $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ Phosphors

GAO Ming-yuan<sup>1</sup>, LUO Lan<sup>1,2\*</sup>, GUO Rui<sup>1</sup>, WANG Yu<sup>1</sup>, ZHANG Peng-peng<sup>1</sup>

1. School of Materials Science and Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China

2. Key Laboratory of Lightweight and High Strength Structural Materials of Jiangxi Province, Nanchang University, Nanchang 330031, China

**Abstract**  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  phosphor series samples were prepared by high-temperature solid-state method (at 1 150, 1 200 and 1 250 °C). By XRD, PL and photograph records under UV lights, the composition- phase-emission light color relationship was established, and the ternary color diagram was then derived. The influence of fabricated temperatures, both on phase constitution and on emission color, was investigated too. Phase analysis showed that  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  powder would gradually change in phase constitution. Starting from  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  corner, the powder is a single phase till to the ones with the composition having maximum  $\text{Mg}^{2+}$  or  $\text{Sr}^{2+}$  solution. For  $\text{Sr}_2\text{SiO}_4$  or  $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$  corner, there are two phases in the powder. Phase constitution is gradually complicated as  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$  contents are almost the same to each other. Furthermore, the higher the fabricated temperature, the larger  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ -single-phase region is. At 1 150, 1 200, and 1 250 °C the solid solubility of  $\text{Mg}^{2+}$  ( $\text{Sr}^{2+}$ ) were 20<sub>at</sub>% (30<sub>at</sub>%), 30<sub>at</sub>% (35<sub>at</sub>%) and 35<sub>at</sub>% (40<sub>at</sub>%). For the mixed-phase region, the number of phase components for the same composition is reduced. PL spectral analysis shows that the green emission is strong and red emission is weaker for the same sample under the excitation comparing 365 nm with 254 nm. The emission color and intensity under ultraviolet excitation change also gradually.  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$ -phase powders are green phosphors, and its emission intensity increases as the  $\text{Sr}^{2+}$  and  $\text{Mg}^{2+}$  solution. For the mixture region, the powder changes from green to red phosphor as  $\text{Ba}^{2+}$  content decreases, and red phosphors' brightness decreases gradually as  $\text{Mg}^{2+}$  content decreases. For example,  $(\text{Mg}_{1-y}\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  series changes from bright red to dark red phosphor as  $y$  increases. When the fabrication temperature is increased, the overall brightness of the phosphor in the  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  single-phase region is improved with the  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  content increases in brightest phosphor composition. The increasing of fabrication temperature also makes the emission intensity of the phosphors in mixed phase region increase, and the green phosphor region becomes larger (under 254 nm excitation, the red-green transition point of  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Ba}_x)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  is  $x_{1\ 150\ ^\circ\text{C}} = 0.5$ ,  $x_{1\ 200\ ^\circ\text{C}} = 0.4$ ,  $x_{1\ 250\ ^\circ\text{C}} = 0.3$ ,  $(\text{Ba}_{1-y}\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  is  $y_{1\ 150\ ^\circ\text{C}} = 0.6$ ,  $y_{1\ 200\ ^\circ\text{C}} = 0.7$ ,  $y_{1\ 250\ ^\circ\text{C}} = 0.8$ ,  $(\text{Ba}_x(\text{Mg}_{0.2}\text{Sr}_{0.8})_{1-x})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  is  $x_{1\ 150\ ^\circ\text{C}} = 0.5$ ,  $x_{1\ 200\ ^\circ\text{C}} = 0.4$ ,  $x_{1\ 250\ ^\circ\text{C}} = 0.3$ . The work has a systematic search on the relationship among composition-structure (phase constitution)-fabrication (temperature)-property (luminescence) for  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  powder, and screened out a series of good phosphors, for examples as  $(\text{Mg}_{0.35}\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.05})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}/(\text{Mg}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$ . Single-phase green phosphor is brighter than mixed-phase green phosphor. The solubility increasing can improve  $\text{Ba}_2\text{SiO}_4$  single-phase green phosphor intensity. The higher fabricated temperature, the larger single-phase green phosphor region, the larger mixed-phase green phosphor region, and higher luminescent intensity for  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  phosphors.  $(\text{Mg}_{1-x-y}\text{Ba}_x\text{Sr}_y)_{1.95}\text{SiO}_4 : 0.05\text{Eu}$  emission light color dependence of the composition and temperature would be applied to other phosphor series, and it can also give a guide for new luminescent material discovering.

**Keywords** Phase diagram; Luminescence; Calcination temperature; Orthosilicate

(Received Jan. 16, 2020; accepted Apr. 30, 2020)

\* Corresponding author