

文章编号: 1000-7032(2023)09-1581-07

YAG:Ce玻璃陶瓷选择性激光烧结制备及其发光性能

张琦, 迟宏毅, 吴海洋, 赵国煜, 韦玮*

(南京邮电大学 电子与光学工程学院, 柔性电子(未来技术)学院, 江苏 南京 210023)

摘要: 荧光玻璃陶瓷结合了荧光粉优异的发光性能和玻璃基质良好的热导率及热稳定性的特点, 已在高功率白光LED乃至激光照明领域引起了广泛的关注。本文采用一种选择性激光(CO₂激光器)烧结技术, 制备了YAG:Ce荧光玻璃陶瓷, 并研究了其荧光发光性能以及构筑的白光LED的器件性能。与传统的重熔融或固相烧结方法不同, 选择性激光烧结技术仅对局部加热且升/降温速率大, 因此该方法具有节能和快速的特点。研究表明, 选用适当的激光功率(24 W)、扫描速度(135 mm/s)和扫描间隔(9 μm)等参数, 可制备出形貌较好的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷; 经过630 °C热处理1 h消除应力后, 其呈现出Ce³⁺离子典型的4f→5d能级跃迁对应的宽带激发光谱(峰值为340 nm和455 nm)以及5d→4f能级跃迁对应的宽带发射光谱(峰值为570 nm), 量子效率达82%; 与450 nm蓝光LED芯片(3.11 V, 0.30 A)组合后, 可实现92 lm的白光输出, 流明效率为98 lm/W, 显色指数为69, 色温为5 001 K, 色坐标为(0.34, 0.35)。以上结果表明, 该方法在制备荧光玻璃陶瓷中具有重要的应用潜力。

关键词: 荧光玻璃陶瓷; Ce³⁺掺杂; 选择性激光烧结; 白光发光二极管

中图分类号: O482.31

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20230095

Luminescence Properties of Selective Laser Sintered YAG:Ce Glass Ceramic Phosphors

ZHANG Qi, CHI Hongyi, WU Haiyang, ZHAO Guoyu, WEI Wei*

(College of Electronic and Optical Engineering & College of Flexible Electronics(Future Technology), Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China)

* Corresponding Author, E-mail: weiwei@njupt.edu.cn

Abstract: Efficient and thermally robust glass ceramic phosphors combined both the merits of phosphors and matrix have received growing interests in the white-LED and laser driven lighting. Here, the YAG:Ce glass ceramics were prepared by an energy saving and fast selective laser sintering with suitable parameters (laser power: 24 W, scanning speed: 135 mm/s, scanning intervals: 9 μm). The results show that selective laser sintered YAG:Ce glass ceramic after heat treatment (630 °C, 1 h) exhibits the typical Ce³⁺ 4f→5d broadband excitations centered at 340 nm and 455 nm and 5d→4f emission centered at 570 nm and its photoluminescence quantum yield is up to 82%. Moreover, combining with a 450 nm LED chip (3.11 V, 0.30 A) directly, the obtained performances including the luminous flux (92 lm), luminous efficiency (98 lm/W), color rendering index (69), correlated color temperature (5 001 K), and chromaticity coordinates (0.34, 0.35) are close to other YAG:Ce glass ceramic reported. All of those validate the suitability of selective laser sintering for preparation of glass ceramics.

Key words: glass ceramic phosphor; Ce³⁺ doped; selective laser sintering; white light-emitting diodes

收稿日期: 2023-04-13; 修订日期: 2023-05-06

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFF0100901)

Supported by National Key Research and Development Program of China(2016YFF0100901)

1 引 言

固态照明器件因其能耗低、亮度高、寿命长以及环境友好的特性被认为是可替代传统光源(白炽灯、荧光灯等)的新一代光源器件^[1-3]。目前,构筑白光的主流方案仍是采用蓝色发光二极管(Light-emitting diodes, LED)组合有机树脂或硅胶封装的 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ (YAG:Ce)黄色荧光粉^[4-6]。但是,有机封装材料的热导率较低(0.1~0.4 W/(m·K))且热稳定性较差(<150 °C),严重限制了其在高功率领域的应用^[7-9]。

荧光玻璃陶瓷是一种将荧光粉嵌入玻璃基质中而形成的复合材料,其同时具有荧光粉优异的发光性能和玻璃基质良好的热导率及热稳定性的特点,引起了广泛的关注^[10-13]。相比于荧光玻璃,其发光效率更高;相比于荧光陶瓷,其制备工艺及加工过程更加简单^[14-16]。不过,荧光玻璃陶瓷的制备往往需要经过十几分钟乃至数小时的高温(>800 °C)重熔融或固相烧结过程,高温过程不仅对制备过程提出了较高的要求,也会对荧光粉颗粒产生侵蚀作用,造成发光效率下降^[12]。激光具有能量密度大的特点,可在局部产生极高的温度(CO_2 激光器,~2 000 °C),且根据激光的功率及照射时间可便捷地调节温度,故而采用激光辐照可快速(小于1 s)加热样品至熔融^[17]。由于时间极短,可有效减弱侵蚀作用。另一方面,通过控制激光移动路径,可根据需求形成尺寸和结构可控的定制化样品,减少了切割等冷加工操作造成的剩余材料的浪费^[18-20]。目前,关于3D打印玻璃或陶瓷材料的报道主要采用光固化3D打印技术^[21-23]。

虽然其具有更高的精度,但其仅优化了玻璃陶瓷或陶瓷的成型过程,仍需要高温烧结,以除去有机物并进行固相反应。选择性激光烧结技术不仅可以实现荧光陶瓷制备所需的高温,而且可以通过控制激光路径对样品进行选择性烧结。但是,由于其参数的复杂性,采用该方法制备荧光玻璃陶瓷的报道相对较少。

本文采用一种激光(CO_2 激光器)选择性烧结技术制备了YAG:Ce荧光玻璃陶瓷。首先研究了选择性激光烧结中激光功率、扫描速度及扫描间隔等参数对于YAG:Ce玻璃陶瓷样品形貌的影响规律。其次,研究了后续热处理工艺对样品发光性能的影响。最后,采用选择性激光烧结制备的荧光陶瓷组合450 nm蓝色LED芯片,评价了样品的器件性能。

2 实 验

2.1 样品制备

YAG:Ce玻璃陶瓷制备过程中所使用的浆料采用商用的YAG:Ce荧光粉(5 μm)与低融化温度的玻璃粉($\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-Na}_2\text{O-CaO-TiO}_2$, $T_g=570$ °C, 12 μm)以3:7的质量比、并加入适量的PVA溶液(6%)充分混合得到。以蓝宝石片为基底,利用刮刀铺粉(50 μm),采用二氧化碳激光器(波长:10.51~10.65 μm , 频率:20 kHz, 光斑尺寸:50 μm)以一定的功率(20~28 W)、扫描速度(125~140 mm/s)及扫描间隔(3~12 μm)照射(S型移动),形成打印面,并重复上述步骤,直至设定的层数,形成样品,如图1所示。具体正交设计参数(三因素四水平)如表1所示。其中断点个数描述

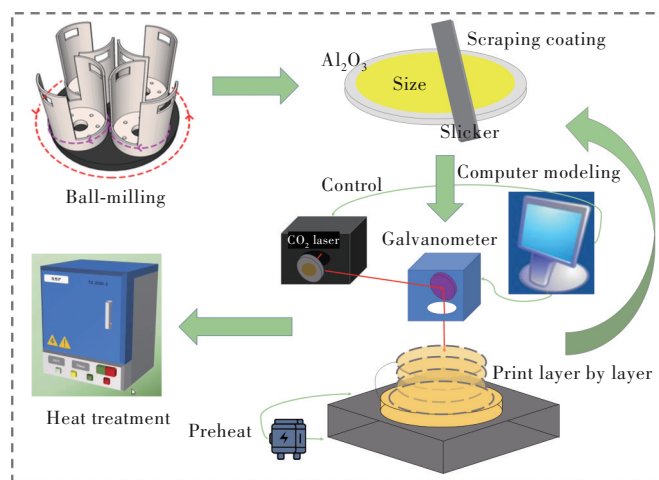


图1 选择性激光烧结制备荧光玻璃陶瓷工艺示意图

Fig.1 Diagram of selective laser sintered glass ceramics

样品表现形貌中的气孔或者裂纹等不连续情况。并在一定温度(570~660 °C)下热处理1 h以消除选择性激光烧结过程中,由于温度快速变化造成的热应力。

表1 玻璃陶瓷样品的选择性激光烧结参数

Tab. 1 Selective laser sintered parameters of glass ceramics

序号	激光功率/ W	扫描速度/ (mm·s ⁻¹)	扫描间隔/ μm	断点 个数
1	20	125	3	34
2	20	130	9	5
3	20	135	12	32
4	20	140	6	10
5	22	125	12	20
6	22	130	6	8
7	22	135	3	27
8	22	140	9	14
9	24	125	6	8
10	24	130	12	24
11	24	135	9	3
12	24	140	3	34
13	26	125	9	11
14	26	130	3	37
15	26	135	6	10
16	26	140	12	21

2.2 样品表征

YAG:Ce玻璃陶瓷样品的X射线衍射(X-ray diffraction, XRD)谱通过德国Bruker D8 Advance型X射线衍射仪测得,其Cu K α 辐射源工作电压为40 kV、电流为40 mA,扫描速率为4(°)/min。微观形貌采用日本Hitachi S4800型高分辨场发射扫描电子显微镜(Scanning electron microscope, SEM)测得。激发光谱、发射光谱、荧光寿命和量子效率采用英国Edinburgh FLS920型瞬态/稳态荧光光谱仪测得。其中激发光谱、发射光谱、量子效率采用450 W氙灯作为光源;荧光衰减曲线采用365 nm LED灯作为光源;量子效率的测试中采用BaSO₄涂层的积分球。实物图及样品照片采用日本Nikon D90型单反相机拍摄。白光LED器件(450 nm蓝光芯片和样品组合)的光通量、发射光谱、色坐标、显色指数和色温等性能参数直接由中国远方HAAS-1200型精密快速光谱辐射计测得。以上所有测试均在室温下进行。

3 结果与讨论

3.1 选择性激光烧结参数分析

图2给出了不同选择性激光烧结参数制备的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷样品的实物图,具体参数

见表1。从图中可以直观地看出4、6和11号样品呈现出较为光滑的表面,且气孔较少,其中11号样品最佳。其他样品均呈现出数量不等的气孔。在所有样品中,1、7、12和14号样品的气孔数量相对较多。与其他样品相比,这4个样品的扫描间隔较小(3 μm),在S型扫描时,上一次扫描的温度残留对下一次扫描影响较大,使得熔池变大。在表面张力作用下,玻璃熔体挟裹YAG:Ce颗粒发生位移,造成部分位置粉体不足,形成气孔。此外,不同打印参数制备的样品的气孔大小也不一致。例如,14号的气孔明显大于1号样品,这是由于14号和1号样品的扫描速度及间隔相当,但14号样品采用了更大的激光功率,其熔池也远大于1号,粉末位移变大。

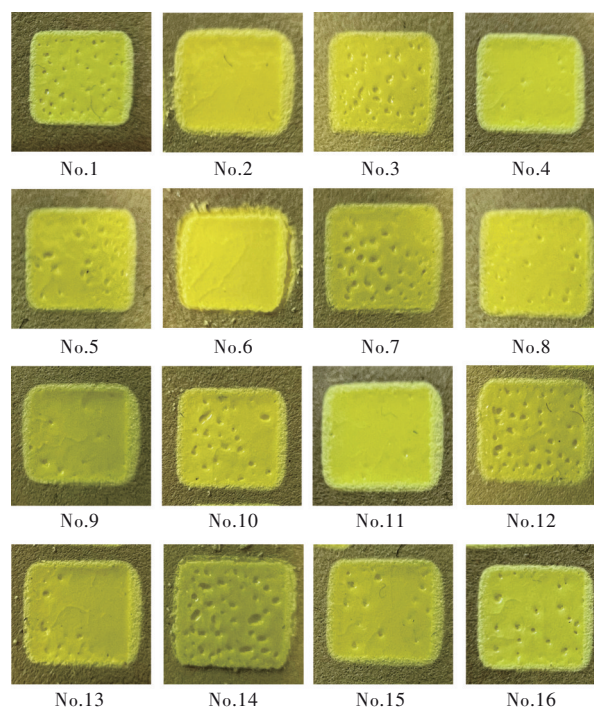


图2 不同选择性激光烧结参数制备的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷(4 mm × 4 mm)样品实物图

Fig.2 Images of YAG:Ce glass ceramics (4 mm × 4 mm) with different selective laser sintered parameters

表2为选择性激光烧结中使用的正交实验的极差分析表。根据表中的极差分析可知,激光扫描间距的极差最大,激光功率和激光扫描速度的极差相对较小。该结果表明,在本实验中,激光扫描间距对样品的表现形貌产生的影响最大;激光功率和激光扫描速度产生的影响相对较小。此外,均值分析表明,因素1(激光功率)、因素2(扫描速度)和因素3(扫描间隔)的最少断点均值分

别为 17.25, 18.00, 8.25, 其对应的水平分别为水平 2 或 3、水平 3 和水平 3。因此, 最优的工艺组合分别为激光功率 22 W 或 24 W、扫描速度 135 mm/s 和扫描间隔 9 μm 。

表 2 正交实验极差分析

Tab. 2 Range analysis of orthogonal experiments

项	水平	因子 1 激光功率	因子 2 扫描速度	因子 3 扫描间隔
K	1	81	73	132
	2	69	74	36
	3	69	72	33
	4	79	79	97
K _{avg}	1	20.25	18.25	33.00
	2	17.25	18.50	9.00
	3	17.25	18.00	8.25
	4	19.75	19.75	24.25
最佳水平		22 / 24	135	9
R		3.00	1.75	24.75

图 3(a) 为选择性激光烧结的 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷的断面微观形貌。YAG:Ce 颗粒被均匀地嵌入在玻璃基质中, 其中 YAG:Ce 颗粒尺寸约为 2~5 μm , 未观测到明显的气孔, 表明其致密度良好。

图 3(b) 是 YAG:Ce 荧光陶瓷的原料及选择性

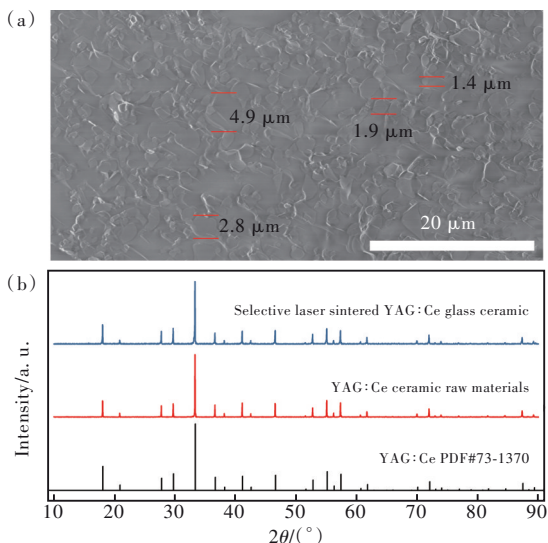


图 3 (a) 选择性激光烧结 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷的断面微观形貌; (b) YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷原料及选择性激光烧结后的 X 射线衍射谱。

Fig.3 (a) SEM image of selective laser sintered YAG:Ce glass ceramic. (b) XRD patterns of raw materials and selective laser sintered YAG:Ce ceramic.

激光烧结后的 X 射线衍射谱。其呈现出尖锐的衍射峰, 且所有的衍射峰均可以与 18.1°、27.8°、29.8°、33.4°、36.7°、41.2°、46.6°、52.8°、55.1°、57.4° 等 YAG 晶相 (PDF#73-1370) 的主要衍射峰获得良好的匹配, 无明显的其他杂相生成。此外, 通过选择性激光烧结后, 衍射峰未发生明显的改变。以上结果表明, 通过选择性激光烧结技术可以快速且个性化地制备 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷。

3.2 发光性能分析

图 4(a) 给出了选择性激光烧结的 YAG:Ce 荧光陶瓷的激发光谱, 监测波长为 570 nm。其呈现出了 2 个宽带激发峰, 峰值波长分别为 340 nm 和 455 nm, 对应着 Ce³⁺ 离子的 4f→⁵d₁ 和 4f→⁵d₂ 能级跃迁。相对而言, 455 nm 处激发峰的强度更强, 其半峰宽约为 80 nm, 可与商用的蓝光 LED 芯片获得良好的匹配。为了和商用的 450 nm 蓝光芯片相匹配, 后续的发射光谱测试采用 450 nm 蓝光

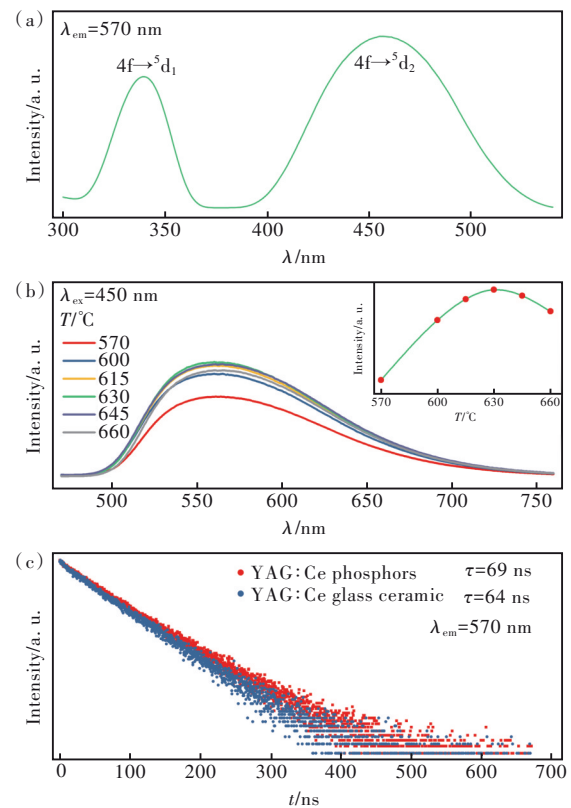


图 4 选择性激光烧结 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷的激发光谱 (a)、在不同温度热处理后的发射光谱 (b) 和荧光强度衰减曲线 (c)。

Fig.4 Excitation (a), emission (b) spectra under different heat treatment temperature, and luminescence decay curves (c) of selective laser sintered YAG:Ce glass ceramic.

激发。

图4(b)为450 nm蓝光激发下不同温度热处理后选择性激光烧结的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷的发射光谱。其表现出了典型的Ce³⁺离子的5d→4f跃迁产生的宽带发射,峰值波长约为570 nm,半峰宽约为120 nm^[24-25]。随着热处理温度从570 °C升高至660 °C,其发射光谱呈现出了先增加后减小的趋势。这主要由以下两个方面的因素共同导致:一方面,当热处理温度超过玻璃化转变温度后,由于选择性激光烧结过程中过快的升/降温速度造成的热应力以及少部分气孔得以消除,使得发光强度增加;另一方面,YAG:Ce颗粒受到硅酸盐玻璃的侵蚀,其发光效率逐渐降低^[26]。故而,其发光强度呈现出了先增大后减小的趋势,并在热处理温度为630 °C时出现最大值。

图4(c)是YAG:Ce荧光粉和选择性激光烧结的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷(630 °C热处理后)荧光强度衰减曲线。二者的荧光强度衰减曲线均呈现出单指数衰减的趋势,其荧光寿命可通过如下公式拟合得出:

$$I(t) = A \exp(-t/\tau), \quad (1)$$

其中, I 为荧光强度, A 为拟合常数, t 为时间, τ 为荧光寿命^[27]。YAG:Ce荧光粉和选择性激光烧结的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷的拟合寿命分别为69 ns和64 ns,二者寿命差距较小。YAG:Ce荧光粉和选择性激光烧结的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷(630 °C热处理后)的量子效率分别为86%和82%。以上结果表明,在选择性激光烧结过程中,YAG:Ce的发光性能仅受到较小的影响。

3.3 基于选择性激光烧结的玻璃陶瓷的白光LED性能

图5(a)为采用1 W的450 nm蓝光LED芯片组合选择性激光烧结的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷获得的白光LED器件的发射光谱,插图为器件实物图。部分蓝光被YAG:Ce荧光玻璃陶瓷转换为黄光,蓝光和黄光组合出白光。在0.30 A电流驱动下,实现了92 lm的白光输出,其流明效率为98 lm/W。表3给出了不同工艺制备的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷的器件性能。和已报道的其他制备方法相比,本方法制备的样品的器件性能可达到与其他方法制备的玻璃陶瓷相当的水平。

图5(b)是采用3 W蓝光LED芯片组合选择性激光烧结的YAG:Ce荧光玻璃陶瓷构筑的白光

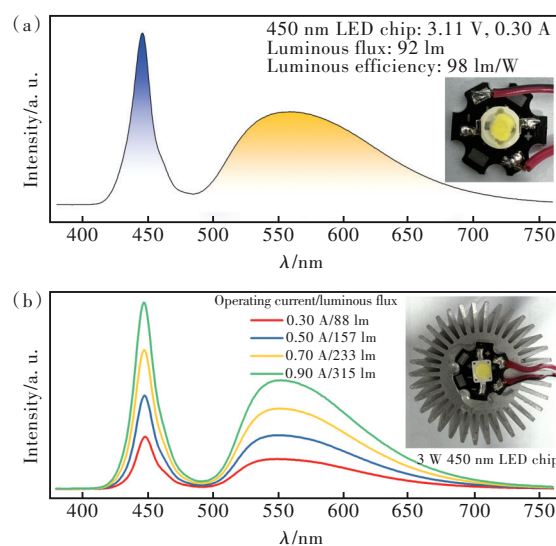


图5 采用1 W(a)和3 W(b)的450 nm蓝光芯片组合选择性激光烧结YAG:Ce荧光玻璃陶瓷的白光LED器件的发射光谱

Fig.5 Emission spectra of WLED devices fabricated with selective laser sintered YAG:Ce glass ceramic on a 1 W (a) and 3 W (b) 450 nm blue LED chip

表3 不同方法制备的YAG:Ce荧光体的流明效率

Tab.3 YAG:Ce phosphors with different preparation methods

色坐标	制备方法	流明效率/ (lm·W ⁻¹)	参考文献
0.34, 0.35	选择性激光烧结	98	Our work
0.319, 0.356	丝网印刷	98	[28]
0.334, 0.373	高温固相	92	[29]
0.312, 0.332	高温固相	120	[10]
0.396, 0.428	高温固相	105	[30]

LED器件的发射光谱。在不同的电流(0.30 ~ 0.90 A)驱动下,其发射光谱呈现出明显的增强。当工作电流为0.90 A(3.72 V)时,其光通量为315 lm,对应的流明效率为94 lm/W。由于器件尺寸相当,而功率更大,其产生了更多的热量。然而,荧光玻璃陶瓷表现出良好的热稳定性,其流明效率仅略低于1 W的白光LED器件。

图6是白光LED器件的色坐标及点亮后的照片。在0.30 A电流的驱动下,该白光LED器件的色坐标为(0.34,0.35),色温为5001 K,基本位于白光区域。由于YAG:Ce荧光粉的红光缺失问题,其显色指数仅为69。

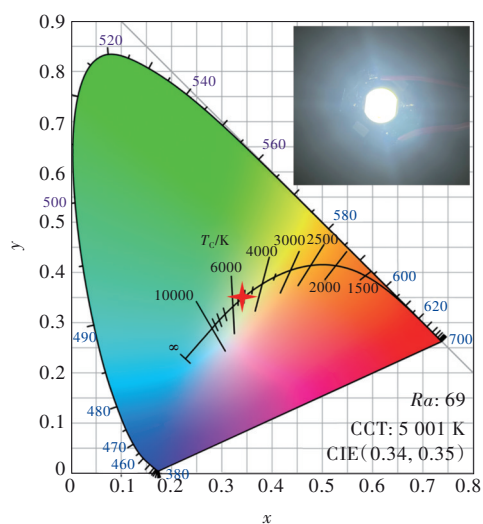


图 6 白光 LED 器件 (1 W) 的色坐标及点亮后的照片

Fig.6 CIE chromaticity diagram and photographs of WLED device (1 W)

4 结 论

本文采用选择性激光烧结技术制备了一种 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷,并研究其荧光发光性能以及构筑的白光 LED 的器件性能。选择性激光烧结技术具有能耗低、速度快和个性化的优势,同时有望

制备具有高结构复杂度的荧光玻璃陶瓷。研究结果表明,选用适当激光功率(24 W)、扫描速度(135 mm/s)和扫描间隔(9 μm)等参数可制备出形貌较好的 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷。选择性激光烧结各参数中,功率及扫描速度主要决定了样品被加热的温度;既应保证样品可被熔融,又不至于温度过高导致样品汽化。扫描间隔是决定样品整体形貌好坏的关键因素;过窄则导致严重的热累积,过宽则会留有间隙无法形成连续的面。此外,后续热处理可有效地消除由于打印过程中过快的升降温速度造成的热应力,并消除部分气孔。经过 630 $^{\circ}\text{C}$ 热处理 1 h 消除应力后,其量子效率可达 82%。与蓝光 LED 芯片组合白光 LED 器件后,在 0.30 A 电流的驱动下,其光通量为 92 lm, 流明效率为 98 lm/W, 色坐标为 (0.34, 0.35), 色温为 5 001 K。其器件性能可达到与其他方法制备的玻璃陶瓷相当的水平。以上结果表明,采用选择性激光烧结技术设计制备 YAG:Ce 荧光玻璃陶瓷具有重要的应用潜力。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:
<http://cjl.lightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20230095>.

参 考 文 献:

- [1] ZHANG D, ZHANG X T, ZHENG B F, *et al.* Li⁺ ion induced full visible emission in single Eu²⁺-doped white emitting phosphor: Eu²⁺ site preference analysis, luminescence properties, and WLED applications [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2021, 9(19): 2100337-1-13.
- [2] YANG Z Y, LIU G C, ZHAO Y F, *et al.* Competitive site occupation toward improved quantum efficiency of SrLaScO₄:Eu red phosphors for warm white LEDs [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2022, 10(6): 2102373-1-9.
- [3] HUANG S, SHANG M M, YAN Y, *et al.* Ultra-broadband green-emitting phosphors without cyan gap based on double-heterovalent substitution strategy for full-spectrum WLED lighting [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2022, 16(12): 2200473.
- [4] GU C, WANG X J, XIA C, *et al.* A new CaF₂-YAG:Ce composite phosphor ceramic for high-power and high-color-rendering WLEDs [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2019, 7(28): 8569-8574.
- [5] BAO S Y, LIANG Y Y, WANG L S, *et al.* Superhigh-luminance Ce:YAG phosphor in glass and phosphor-in-glass film for laser lighting [J]. *ACS Sustainable Chem. Eng.*, 2022, 10(24): 8105-8114.
- [6] ZHAO H Y, LI Z, ZHANG M W, *et al.* High-performance Al₂O₃-YAG:Ce composite ceramic phosphors for miniaturization of high-brightness white light-emitting diodes [J]. *Ceram. Int.*, 2020, 46(1): 653-662.
- [7] WANG L H, LIU J W, XU L, *et al.* Realizing high-power laser lighting: artfully importing micrometer BN into Ce:Gd-YAG phosphor-in-glass film [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2023, 17(2): 2200585.
- [8] LIN H, HU T, CHENG Y, *et al.* Glass ceramic phosphors: towards long-lifetime high-power white light-emitting-diode applications-a review [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2018, 12(6): 1700344-1-31.
- [9] WANG L, WEI R, ZHENG P, *et al.* Realizing high-brightness and ultra-wide-color-gamut laser-driven backlighting by using laminated phosphor-in-glass (PiG) films [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2020, 8(5): 1746-1754.
- [10] ZHANG R, LIN H, YU Y L, *et al.* A new-generation color converter for high-power white LED: transparent Ce³⁺:YAG phosphor-in-glass [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2014, 8(1): 158-164.

- [11] HUANG M H, ZHU Q Q, LI S X, *et al.* Thermally robust $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-La}_3\text{Si}_6\text{N}_{11}:\text{Ce}^{3+}$ composite phosphor-in-glass (PiG) films for high-power and high-brightness laser-driven lighting [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2023, 11(2): 488-496.
- [12] ZHANG D, XIAO W G, LIU C, *et al.* Highly efficient phosphor-glass composites by pressureless sintering [J]. *Nat. Commun.*, 2020, 11(1): 2805-1-8.
- [13] SUI P, LIN H, LIN Y, *et al.* Toward high-power-density laser-driven lighting: enhancing heat dissipation in phosphor-in-glass film by introducing h-BN [J]. *Opt. Lett.*, 2022, 47(14): 3455-3458.
- [14] ZHANG Q, ZHENG R L, WANG D X, *et al.* A single Mn^{2+} ions activated fluosilicate glass with continuously tunable broadband emission from 475 nm to 800 nm [J]. *J. Lumin.*, 2020, 227: 117532-1-6.
- [15] YAO Q, HU P, SUN P, *et al.* YAG:Ce³⁺ Transparent ceramic phosphors brighten the next-generation laser-driven lighting [J]. *Adv. Mater.*, 2020, 32(19): 1907888-1-7.
- [16] WEN B, ZHANG D F, JIANG B, *et al.* Thermal conductivity of Ce³⁺ doped (Y, Gd)₃Al₅O₁₂ ceramic phosphor [J]. *J. Lumin.*, 2020, 221: 116886-1-5.
- [17] MA X G, LI X Y, LI J Q, *et al.* Pressureless glass crystallization of transparent yttrium aluminum garnet-based nanoceramics [J]. *Nat. Commun.*, 2018, 9(1): 1175-1-9.
- [18] ZHU X Y, XU Q, LI H K, *et al.* Fabrication of High-performance silver mesh for transparent glass heaters via electric-field-driven microscale 3D printing and UV-assisted microtransfer [J]. *Adv. Mater.*, 2019, 31(32): 1902479-1-9.
- [19] COOPERSTEIN I, INDUKURI S R K C, BOUKETOV A, *et al.* 3D printing of micrometer-sized transparent ceramics with on-demand optical-gain properties [J]. *Adv. Mater.*, 2020, 32(28): 2001675-1-8.
- [20] CHEN Z, SUN X H, SHANG Y P, *et al.* Dense ceramics with complex shape fabricated by 3D printing: a review [J]. *J. Adv. Ceram.*, 2021, 10(2): 195-218.
- [21] ZHANG G R, CARLONI D, WU Y Q. 3D printing of transparent YAG ceramics using copolymer-assisted slurry [J]. *Ceram. Int.*, 2020, 46(10): 17130-17134.
- [22] WANG H M, LIU L Y, YE P C, *et al.* 3D printing of transparent spinel ceramics with transmittance approaching the theoretical limit [J]. *Adv. Mater.*, 2021, 33(15): 2007072-1-9.
- [23] CARLONI D, ZHANG G R, WU Y Q. Transparent alumina ceramics fabricated by 3D printing and vacuum sintering [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2021, 41(1): 781-791.
- [24] 黄新友, 王雁斌, 程梓秋, 等. 高亮度固态照明用LuYAG:Ce荧光陶瓷 [J]. *发光学报*, 2023, 44(6): 964-974.
HUANG X Y, WANG Y B, CHENG Z Q, *et al.* LuYAG:Ce transparent ceramic phosphors for high-brightness solid-state lighting application [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2023, 44(6): 964-974. (in Chinese)
- [25] 吕清洋, 薛秉国, 王婷婷, 等. 白光照明用YAG:Ce荧光薄膜研究进展 [J]. *发光学报*, 2020, 41(11): 1323-1334.
LYU Q Y, XUE B G, WANG T T, *et al.* Research progress of YAG:Ce fluorescent films for white lighting [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2020, 41(11): 1323-1334. (in Chinese)
- [26] YOU S H, LI S X, ZHENG P, *et al.* A thermally robust $\text{La}_3\text{Si}_6\text{N}_{11}:\text{Ce}$ -in-glass film for high-brightness blue-laser-driven solid state lighting [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2019, 13(2): 1800216-1-10.
- [27] CHEN X P, HU Z W, CAO M Q, *et al.* Influence of cerium doping concentration on the optical properties of Ce, Mg:LuAG scintillation ceramics [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2018, 38(9): 3246-3254.
- [28] ZHUANG Y J, LI C Y, LIU C L, *et al.* High-efficiency YAG:Ce³⁺ glass-ceramic phosphor by an organic-free screen-printing technique for high-power WLEDs [J]. *Opt. Mater.*, 2020, 107: 110118-1-6.
- [29] ZHANG X J, YU J B, WANG J, *et al.* All-Inorganic light convertor based on phosphor-in-glass engineering for next-generation modular high-brightness white LEDs/LDs [J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(4): 986-995.
- [30] XIA L B, XIAO Q H, YE X Y, *et al.* Erosion behavior and luminescence properties of $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ -embedded calcium bismuth borate glass-ceramics for WLEDs [J]. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2019, 102(4): 2053-2065.



张琦(1992-),男,江苏徐州人,博士,博士后,2021年于南京邮电大学获得博士学位,主要从事发光玻璃及陶瓷的研究。

E-mail: qizhang@njupt.edu.cn



韦玮(1960-),女,江苏南京人,博士,教授,博士生导师,1998年于西安交通大学获得博士学位,主要从事光电功能材料与器件的研究。

E-mail: weiwei@njupt.edu.cn