发光学报
CHINESE JOURNAL OF LUMINESCENCE
中文核心期刊
主管：中国科学院
主办：中国科学院长春光学精密机械与物理研究所
中国物理学会发光分会
主编：申德振

基于Ce^{3+}：YAG透明陶瓷的大功率LED和LD照明原型器件的发光性能:厚度和表面粗糙度的影响

郑哲涵，张翔，徐小科，刘茜，石云，李茹，王欢，王飞，刘光辉

引用本文:
郑哲涵, 张翔, 徐小科, 等. 基于Ce^{3+}：YAG透明陶瓷的大功率LED和LD照明原型器件的发光性能:厚度和表面粗糙度的影响[J]. 发光学报, 2020, 41(11): 1411-1420.
ZHENG Zhe-han, ZHANG Xiang, XU Xiao-ke, et al. Thickness and Surface Roughness Effect on Lighting Performance of Ce^{3+}: YAG Transparent Ceramics Based High Power LED and LD Lighting Prototype Devices[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2020, 41(11): 1411-1420.

在线阅读 View online: https://doi.org/10.37188/CJL.20200236

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

白光LED用新型MgAl2O4/Ce：YAG透明陶瓷的发光性能

Luminescent Properties of New MgAl2O4/Ce： YAG Transparent Ceramics for White LED Applications

发光学报. 2013, 34(2): 133-138 https://doi.org/10.3788/fgxb20133402.0133

CeYAG透明陶瓷的制备及性能研究

Preparation and Properties of CeYAG Transparent Ceramics

发光学报. 2016, 37(6): 650-654 https://doi.org/10.3788/fgxb20163706.0650

固相法制备Ce,Cr：YAG透明陶瓷及其荧光性能研究

Solid State Preparation and Fluorescence Properties of Ce, Cr： YAG Transparent Ceramics

发光学报. 2016, 37(10): 1213-1216 https://doi.org/10.3788/fgxb20163710.1213

基于YAG:Ce3+荧光粉复合Eu3+ 掺杂荧光玻璃的激光照明器件

Laser Lighting Device Based on YAG:Ce3+ Phosphor Composite Eu3+ Doped Phosphor-in-glasses

发光学报. 2019, 40(7): 842-848 https://doi.org/10.3788/fgxb20194007.0842

基于荧光玻璃的高效LED白光技术

High-efficiency Technology of LED White Light Based on Phosphor Glass

发光学报. 2016, 37(6): 637-643 https://doi.org/10.3788/fgxb20163706.0637

文章编号：1000-7032(2020)11-1411-10

基于 Ce^{3+}：YAG 透明陶瓷的大功率 LED 和 LD 照明原型器件的发光性能：厚度和表面粗糙度的影响

郑哲涵[1,2]，张　翔[1,3]，徐小科[1]，刘　茜[1,3*]，石　云[1*]，
李　茹[4]，王　欢[5]，王　飞[5]，刘光辉[1]

（1. 中国科学院上海硅酸盐研究所 高性能陶瓷和超微结构国家重点实验室，上海　200050；
2. 福州大学 材料科学与工程学院，福建 福州　350116；　3. 中国科学院大学 材料科学与光电研究工程中心，北京　100049；
4. 常州星宇车灯股份有限公司，江苏 常州　213022；　5. 上海激光技术研究所，上海　200233）

摘要： 采用高温真空烧结技术制备了 0.5% Ce: $Y_3Al_5O_{12}$（简称 Ce: YAG）透明荧光陶瓷，在透射模式下分别采用大功率蓝光发光二极管（LED）芯片（3.2 V×0.3 A）激发和 LD 蓝光光源（0.8 W，1.6 W）激发，系统研究了陶瓷厚度（0.3～2.3 mm）和表面粗糙度（322.86 nm，9.79 nm）等对照明原型器件的色温、显色指数和光电转换效率等发光性能的影响。结果表明，陶瓷表面有一定粗糙度可使原型器件的发光性能整体提高，其中用粗糙度为 322.86 nm 的 Ce: YAG 透明陶瓷组装的原型器件分别获得了93.6 lm/W（蓝光 LED 激发）和 178.5 lm/W（蓝光 LD 激发）的高光电转换效率。研究表明，通过调节 Ce: YAG 透明陶瓷的厚度和表面状态，可有效提升高功率密度固态照明器件的发光性能。

关　键　词： Ce: YAG；透明陶瓷；大功率 LED；激光照明；光电转换效率；厚度；表面粗糙度
中图分类号： TQ174　　**文献标识码：** A　　**DOI：** 10.37188/CJL.20200236

Thickness and Surface Roughness Effect on Lighting Performance of Ce^{3+}：YAG Transparent Ceramics Based High Power LED and LD Lighting Prototype Devices

ZHENG Zhe-han[1,2], ZHANG Xiang[1,3], XU Xiao-ke[1], LIU Qian[1,3*],
SHI Yun[1*], LI Ru[4], WANG Huan[5], WANG Fei[5], LIU Guang-hui[1]

(1. *State Key Laboratory of High Performance Ceramics and Superfine Microstructure*, *Shanghai Institute of Ceramics*, *Chinese Academy of Sciences*, *Shanghai* 200050, *China*;
2. *College of Materials Science and Engineering*, *Fuzhou University*, *Fuzhou* 350116, *China*;
3. *Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering*, *University of Chinese Academy of Science*, *Beijing* 100049, *China*;
4. *Changzhou Xingyu Automotive Lighting Systems Co. Ltd.*, *Changzhou* 213022, *China*;
5. *Shanghai Institute of Laser Technology*, *Shanghai* 200233, *China*)
* *Corresponding Authors*, *E-mail*: *qianliu@mail.sic.ac.cn*; *shiyun@mail.sic.ac.cn*

Abstract: Ce: $Y_3Al_5O_{12}$ (Ce: YAG) transparent phosphor ceramics were fabricated by solid state reaction method through vacuum sintering. The effects of thickness (0.3 ~ 2.3 mm) and surface roughness (322.86 nm, 9.79 nm) of the ceramics on correlated color temperature, color rendering

收稿日期： 2020-08-05；**修订日期：** 2020-09-11
基金项目： 国家重点研发计划（2016YFB0701004）；上海市科学技术委员会基金（18511110400）；中国科学院战略性先导科技专项（XDA22000000）；上海市科委扬帆人才计划（17YF1421500）资助项目
Supported by National Key Research and Development Program of China (2016YFB0701004); Research Program of Shanghai Sciences and Technology Commission Foundation (18511110400); Strategic Priority Research Program of The Chinese Academy of Sciences (XDA22000000); Shanghai Sailing Program (17YF1421500)

index, and photoelectric conversion efficiency were studied under the excitation of high power blue LED chip(3.2 V×0.3 A) and blue LD lighting(0.8 W, 1.6 W). The luminescence property can also be improved by tuning the surface roughness of the ceramics, the Ce: YAG transparent ceramics with a roughness of 322.86 nm obtained high luminescence efficiency of 93.6 lm/W(blue light LED excitation) and 178.5 lm/W(blue light LD excitation), respectively. The results show that the luminescence performance of high power density solid-state lighting devices can be effectively improved by adjusting the thickness and surface state of Ce: YAG transparent ceramics.

Key words: Ce: YAG; transparent ceramics; high-power LED; LD lighting; photoelectric conversion efficiency; thickness; surface roughness

1 引 言

近年来,基于大功率发光二极管(Light-emitting diode,LED)和激光二极管(Laser diode,LD)的白光照明受到了国内外广泛的关注[1-6]。普通LED的工作电流一般为20 mA,功率为0.05 W,而大功率LED工作电流达几百毫安,功率可达几瓦,甚至数十瓦。而LD除具有超高亮度、紧凑性及易于聚焦等优点之外,其受激辐射不存在"效率骤降"问题[7],能够在高电流功率密度下实现远高于LED的功率效率。因此,大功率LED和LD的白光照明器件在机场、汽车、航空、高铁和深海水下等高功率密度照明领域显示出广阔的应用前景。以汽车前照灯为例,单个LD元件长度(约10 μm)仅为常规LED的1/100,能耗不及LED的60%,因此,激光前照灯被认为是未来汽车大灯的主流[8-9]。LD照明还可应用于激光显示和可见光通信等领域[10]。

由于大功率照明具有上述特点,对灯具热管理所涉及的荧光材料的热导率、光效和荧光热稳定性都提出了更高要求。普通LED的发光部件采用"荧光粉+有机树脂"封装方案,易在高温下出现发光效率降低、光色偏移及树脂老化等问题。近年来,许多研究聚焦于以玻璃[6,11]、人工晶体[12]和荧光陶瓷[3,13]等块体材料替代"荧光粉+有机树脂"的方案。此外,现阶段白光激光照明主要应用于有高亮度和远距离需求的室外照明,对白光的显色指数要求不高,采用蓝光与黄光复合出射冷白光的配色即可,对红光补色的要求没有室内照明高[14]。这使得主发射波长在550 nm的黄光Ce: YAG作为大功率照明用高效荧光材料的优势更加突出,成为研究的焦点。Xu等[15]研究表明,Ce: YAG晶体具有很高的饱和阈值(超过360 W/mm^2),在3.38 W蓝色激光器(~100 W/mm^2)的激发下,可获得光效145 lm/W、色温4 980 K的白光发射。

荧光材料的性能发挥与器件的封装技术密切相关,在传统的"荧光粉+有机树脂"封装方案中,通常采用改变粉-胶用量比例的形式来调节发光效率。而对块体荧光材料而言,考虑到器件结构设计和小型化的需求,则需要调节块体的尺寸,如直径、厚度等,以实现器件结构匹配,并保证有合适的发光离子体积浓度从而能够实现对蓝光的高效吸收和转换。Waetzig等[16]研究了不同Ce掺杂浓度的YAG陶瓷及其厚度对光色性能的影响,以蓝光LED芯片激发(0.38 W)厚度为0.8 mm的0.5% Ce^{3+}: YAG陶瓷,在276 lm的光通量下获得了76.6 lm/W的光电转换效率。Liu等[17]使用功率达20 W的蓝光LED芯片激发,研究了陶瓷厚度(0.2~1.5 mm厚)对光电性能的影响,结果显示,厚度为1.5 mm的0.3% Ce: YAG透明陶瓷的荧光热稳定性最高。Hu等[18]研究了0.1% Ce: YAG陶瓷的厚度效应(0.25~1.0 mm厚),在蓝光LED芯片(2.7 W)激发下,陶瓷的显色指数随厚度增加而降低,厚度为0.25 mm时,显色指数为73.7。

除材料的厚度效应外,研究还发现,块体荧光材料的表面状态与器件的光取出效率有关[19],也会影响到发光器件的整体性能。Park等[20]在Ce: LuAG陶瓷表面引入二维光子晶体SiN_x,其LED光效提高了1.25倍。Xu和Li等[15,21]通过在陶瓷表面镀高反膜实现了LD激发下Ce: YAG和Ce: LuAG荧光陶瓷光色性能的改进。此外,荧光陶瓷在烧结完成后一般需要进行机械抛光,主要作用

是提高陶瓷表面光洁度与平面度,有利于降低表面散射,提高透光性。以往的研究工作均采用双面抛光的陶瓷进行光色性能表征[21-23]。但是,Lee 等[24]的模拟计算表明,粗糙的表面能够对 LED 芯片发射的蓝光形成散射,使蓝光和黄光的混合效果更好,但尚缺乏实验验证。靳亚硕等[25]研究了双表面未经过抛光处理的 Ce: YAG 陶瓷和单晶在大功率 LD 激发下的光色性能。研究表明,在高功率密度激光激发下,Ce: YAG 陶瓷和单晶均可产生高亮度白光。但是由于没有与抛光样品进行对比研究,无法判断粗糙表面对器件发光性能的具体影响。

前期我们研究了掺杂原子百分比为 0.1%、0.3%、0.5% 和 1.0% 的 Ce: YAG 陶瓷的 LED 光电性能[22],结果表明掺杂浓度 0.5% 的 Ce: YAG 陶瓷综合性能为优值。因此,本文选取稀土离子 Ce^{3+} 掺杂浓度为 0.5% 的 YAG 陶瓷,系统研究了大功率蓝光 LED 芯片(3.2 V×0.3 A)和蓝光 LD 光源(0.8 W,1.6 W)激发下,陶瓷厚度和表面粗糙度对 Ce: YAG 陶瓷基原型器件发光性能的影响。

2　实　　验

2.1　陶瓷制备

将高纯(≥99.99%)氧化物粉体 Al_2O_3、Y_2O_3 和 CeO_2 作为初始原料,按照化学计量比称量粉体,陶瓷样品的化学式为 $Ce_{0.005}$: $Y_{2.995}Al_5O_{12}$(简称 Ce: YAG)。加入 0.8% 的正硅酸乙酯(TEOS)和 0.08% 的 MgO 作为复合烧结助剂。使用无水乙醇为球磨介质,在高能球磨机中混料 12 h 后,将浆料在烘箱中 100 ℃充分干燥,然后经 200 目(75 μm 孔径)过筛,所得粉体干压成直径为 18 mm 的圆片,随后在 250 MPa 冷等静压 5 min 得到素坯。将素坯在 1 750 ℃真空烧结 20 h,获得 Ce: YAG 透明陶瓷。进一步在 1 450 ℃空气气氛中退火 10 h,消除烧结造成的氧空位和内应力。将获得的试样加工至不同厚度(0.3 ~2.3 mm),并选取 0.4,0.5,0.6,0.7,0.8 mm 厚度的 Ce: YAG 陶瓷片仅作单面抛光处理,其余陶瓷片均双面抛光处理,用于测试表征。

2.2　性能表征

采用瓦里安 Cary5000 紫外可见近红外分光光度计测试 Ce: YAG 陶瓷的光学透过率,陶瓷双表面被加工成平行的抛光面。采用日本日立公司 F-4600 型荧光光谱仪测定 Ce: YAG 陶瓷的光致发光特性,激发波长 460 nm。另外准备一组 Ce: YAG 陶瓷加工成单面抛光后,采用美国布鲁克公司 Daktak-XT 型表面轮廓仪测试 Ce: YAG 陶瓷的表面粗糙度 *Ra*。将单面和双面抛光的 Ce: YAG 陶瓷分别与蓝光 LED 芯片和蓝光 LD 光源组合,采用杭州虹谱公司 HSP6000 型光谱分析仪,在积分球中通过透射模式测试 Ce: YAG 陶瓷基原型器件的光电转换效率、显色指数 CRI 和色温 CCT 等光色性能参数。由于陶瓷片在光源尤其在激光光源辐照下存在一定的热致光衰,因此在等待 Ce: YAG 陶瓷发光趋于稳定的情况下进行了多次测试,以获得重复性较高的结果。

2.3　测试用原型器件的组装

实际的器件产品所能容纳的荧光陶瓷尺寸具有一定的范围,依赖于入射到陶瓷片上的光斑大小,如果光斑越小,激发荧光后对后面光束准直越有利。

LED 原型器件的组装:将待测 Ce: YAG 透明陶瓷(厚度 0.3 ~2.3 mm)用胶水固定在商用蓝光 LED 芯片裸片上(3.2 V×0.3 A),陶瓷片覆盖出光区(直径约 4 mm),以 Ce: YAG 陶瓷/LED 表示。蓝光波长 460 nm。

LD 原型器件的组装:将待测 Ce: YAG 透明陶瓷用胶水固定在自制的蓝光 LD 光源(全功率 1.6 W;半功率 0.8 W)出光孔(直径约 10 mm)平齐的平面上,以 Ce: YAG 陶瓷/LD 表示。蓝光波长 455 nm。

3　结果与讨论

图 1 给出了 Ce: YAG 透明陶瓷的光学透过率和光致发光光谱。如图 1(a)插图所示,经真空烧结后的 Ce: YAG 陶瓷呈明亮的黄绿色,为透明块体状。厚度 1.2 mm 的 Ce: YAG 陶瓷在可见光区的直线透过率可达80%,其在 450 nm 处的宽带吸收来源于 Ce^{3+} 的 4f-5d 特征吸收[26]。市场上常见蓝光 LD 的发射光谱峰值波长为 450 nm 附近,谱宽 5 ~10 nm,而蓝光 LED 光谱的峰值波长在 470 nm 附近,谱宽约 100 nm[14],因此,Ce: YAG 陶瓷与商用蓝光 LED 芯片和 LD 的波长匹配性良好。图 1(b)显示,Ce: YAG 陶瓷经460 nm 蓝光激发后,在 500 ~600 nm 范围内有一个宽谱发射,主发射峰位于 530 nm,这是 Ce^{3+} 的 5d-4f 跃迁特征发射。

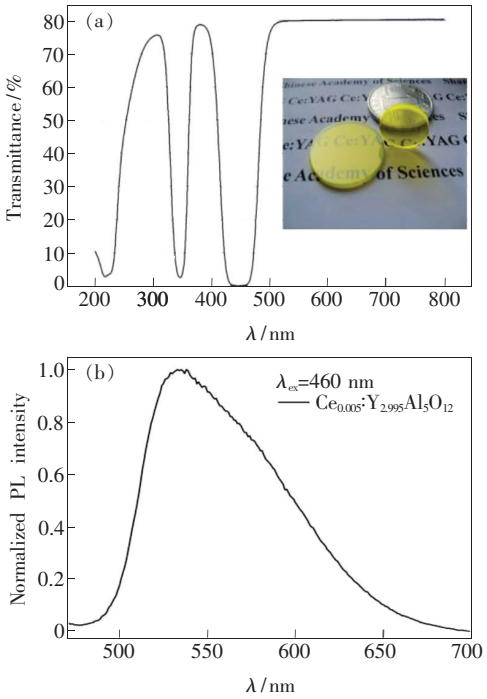

图1 Ce: YAG 透明陶瓷(双面抛光)的透过率(a)(厚度1.2 mm,嵌入图为 Ce: YAG 透明陶瓷的照片)及光致发光光谱(b)(λ_{ex} = 460 nm)。

Fig. 1 Optical transmittance(a)(1.2 mm in thickness) and photoluminescence spectrum(b)(λ_{ex} = 460 nm) of Ce: YAG ceramic disk, with a photo of the ceramics inserted in (a).

3.1 陶瓷厚度对器件发光性能的影响

本文首先研究了 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件(输入功率 0.96 W,3.2 V×0.3 A)的发光性能,并将其与 LD 激发下的性能进行对比。将 Ce: YAG 透明陶瓷双面抛光至不同厚度(0.3~2.3 mm),并与发射波长为 460 nm 的蓝光 LED 芯片组合进行光色参数测试。不同厚度 Ce: YAG 透明陶瓷片封装器件的光电转换效率、显色指数(CRI)和色温(CCT)的变化趋势如图2(a)、(b)所示,陶瓷片在厚度达到 1.8 mm 时发光接近饱和。Ce: YAG 陶瓷的主发射峰在530 nm 附近,来自 Ce^{3+} 特征发射(5d-4f 能级跃迁)[26]。随着陶瓷厚度的增加,Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件的显色指数从74.3(0.3 mm 厚)降低至 48.0(2.3 mm 厚);色温在陶瓷厚度大于 0.9 mm 后降速趋缓,色温保持在 4 300 K 左右。以上现象可归因于陶瓷厚度增加对蓝光的吸收路径延长(吸收增加)以及红光区发射的缺失,导致发光光谱中剩余蓝光成分降低,出射光更多集中在黄光范围,从而色温和显色指数都快速下降。如图2(c)所示,厚度 0.3 mm 的 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件色温高达 100 000 K,这源于较薄的 Ce: YAG 陶瓷的蓝光吸收路径短,且薄片中相应的 Ce^{3+} 总浓度也较低,对蓝光的吸收减少,大部分蓝光没有被吸收,从而色温偏高[25]。显色指数的改善有待通过补充绿光和红光成分来实现,相应的色温也会得到改善[23]。此外,Hu 等[18]的工作表明,低浓度掺杂除使 Ce^{3+} 的特征吸收峰强度降低外,还同时使吸收峰的半高宽变窄,这有利于克服 Ce: YAG 陶瓷中的自吸收效应,提高发光效率从而可获得较高的显色指数。本文工作也表明,厚度为 0.5 mm 左右的 Ce: YAG 陶瓷组装的原型器件的显色指数较高(~75),可满足车灯或广场等远距离、高亮度照明需求[14]。

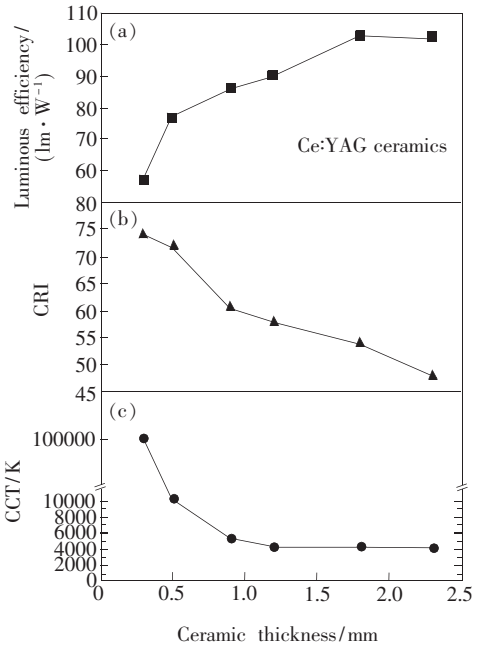

图2 双面抛光、厚度变化范围 0.3~2.3 mm 的不同厚度 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件(3.2 V×0.3 A)的光电转换效率(a)、显色指数 CRI(b)和色温 CCT(c)的变化曲线。

Fig. 2 Changing of photoelectric conversion efficiency(a), color rendering index CRI(b), and correlative color temperature CCT(c) of Ce: YAG ceramics based LED prototype devices(3.2 V×0.3 A) with the thickness(0.3~2.3 mm).

图3所示为不同厚度 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件的 CIE 色坐标图,发光颜色沿着近似直线的轨迹由蓝光区域向白光区域和黄光区域移动。

在陶瓷片厚度为 0.5 mm 时，色坐标位于白光区域；陶瓷厚度大于 0.9 mm 后，色坐标随陶瓷片厚度的增加向黄光区移动，但移动幅度逐渐趋缓。色坐标变化与图 2 所示的光电转换效率、色温以及显色指数的上升与下降趋势相符。

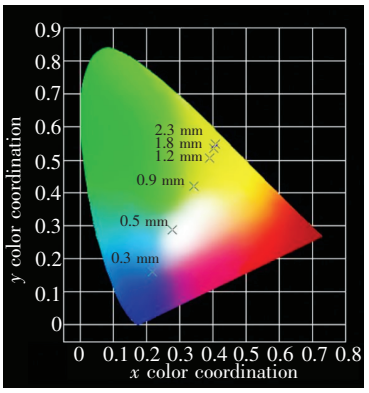

图 3　不同厚度（双面抛光，厚度 0.3 ~ 2.3 mm）Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件（3.2 V × 0.3 A）的 CIE 色坐标图

Fig. 3　CIE of Ce: YAG ceramics based LED prototype devices (3.2 V × 0.3 A) with thickness increasing (0.3 ~ 2.3 mm)

图 4 所示为陶瓷厚度 1.8 mm 和 0.5 mm 的 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件与商用白光 LED 的光谱功率分布对比，其中商业粉体/LED 芯片的流明效率为 91.0 lm/W、色温 7 111 K、显色指数 85.1。可以看到，陶瓷厚度 1.8 mm 的 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件的蓝光比例（图 4（a））相比商业粉体/LED 芯片的蓝光比例（图 4（c））更低，这主要是由于陶瓷对蓝光的吸收更强，较低的蓝光比例使 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件的色温相对偏低。而陶瓷厚度 0.5 mm 的 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件（图 4（b））的蓝光比例和商业白光 LED 芯片（图 4（c））接近，较高比例的蓝光穿透陶瓷片与黄光混合，从而使出射光接近白光，色温升高。

如图 4（c）所示，商业白光 LED 芯片具有更宽的光谱分布以及橙红光区更高的相对强度，因此显色指数相对更高。显色指数反映了照明器件对物体色彩的还原程度，当其数值接近 100（太阳光的显色指数）时显色性最好。因此本实验中的商业白光 LED 芯片更适合于色彩需要精确或正确判断的应用场景，如人眼舒适的室内照明等。而大功率 LED 照明和 LD 照明目前主要面向大面积、远距离的照明需求，达到中等显色性即可满足应用需求。同时，由图 2 综合考虑光电转换效率、显色指数和色温等参数，我们认为在大功率蓝光 LED 芯片或蓝光 LD 光源激发下，厚度为 0.5 ~ 1.0 mm 范围的 Ce: YAG 陶瓷组成的 LED 原型器件可实现白光出射，显色指数约 60 ~ 70，综合性能相对较好。

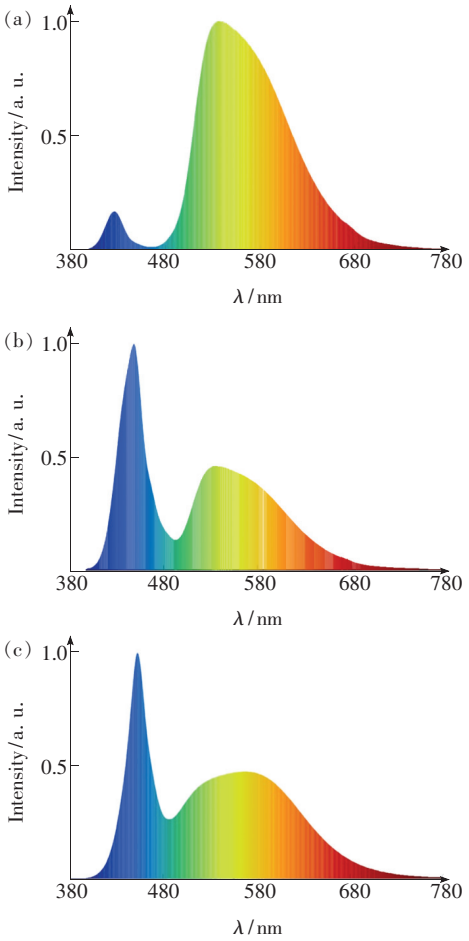

图 4　双面抛光、陶瓷厚度 1.8 mm（a）和 0.5 mm（b）的 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件与商用粉体白光 LED 原型器件（c）的光谱功率分布图。

Fig. 4　Spectral distribution of Ce: YAG based LED prototype devices/LED with double face polished ceramic thickness: (a) 1.8 mm, (b) 0.5 mm, and commercial phosphor white LED prototype devices (c).

3.2　陶瓷表面粗糙度对器件发光性能的影响

Bachmann 等[27] 认为较低的 Ce 掺杂浓度有利于降低材料的热猝灭效应。考虑到器件的小型化设计对荧光材料尺寸有小而薄的需求，在上文已获得厚度为 0.5 ~ 1.0 mm 范围的 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件综合性能较佳的结论基础上，我们进一步研究了 Ce: YAG 透明陶瓷单面抛光后

的表面状态差异对原型器件发光性能的影响。我们选取将陶瓷单面抛光至不同厚度(0.4,0.5,0.6,0.7,0.8 mm),并采用表面粗糙度轮廓仪直接测量陶瓷的表面粗糙度 *Ra* 来表征表面状态。陶瓷表面粗糙度轮廓测试结果示于图 5,测试长度 1.5 mm,从陶瓷的右边缘移向中心,用针尖曲率半径为 2 μm 左右的金刚石触针沿被测表面缓慢滑行,金刚石触针的上下位移量由电学式长度传感器转换为电信号,经放大、滤波、计算出轮廓算数平均偏差 *Ra*,即在取样长度 *L* 内轮廓偏距绝对值的算术平均值,来表征表面粗糙度。经计算获得抛光面的表面粗糙度 *Ra* = 9.79 nm,未抛光面的表面粗糙度 *Ra* = 322.86 nm。

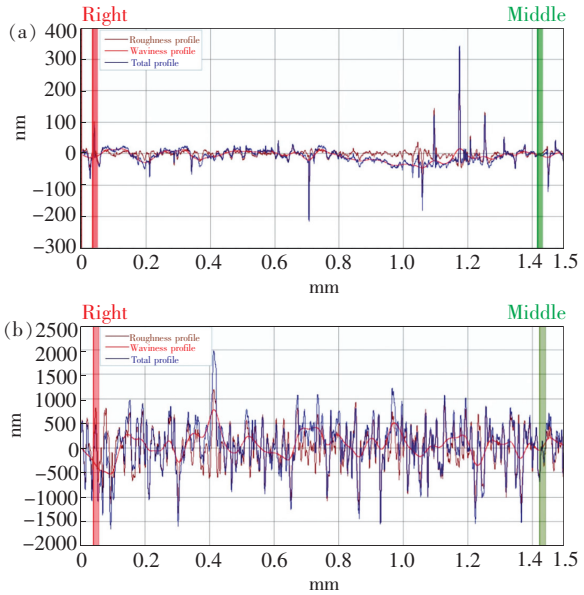

图 5 单面抛光的 Ce: YAG 陶瓷的表面粗糙度轮廓。(a)抛光面;(b)未抛光面。

Fig. 5 Roughness profiles of single-face polished Ce: YAG ceramics surface. (a) Polished surface. (b) Unpolished surface.

将单面抛光的陶瓷片与发射波长为 460 nm 的蓝光 LED 芯片(输入功率为 0.96 W,3.2 V × 0.3 A)组合进行光色性能测试。分别将抛光面(粗糙度 *Ra* = 9.79 nm)及未抛光面(粗糙度 *Ra* = 322.86 nm)朝向 LED 芯片进行封装测试和对比。所测得光色性能参数如图 6 所示,与图 2 中所示的双面抛光陶瓷的光色性能相比,单面抛光的陶瓷光电转换效率整体提高(89 ~ 94 lm/W),色温降至 4 000 K 左右。厚度为 0.7 mm 的 Ce: YAG 具有相对更高的发光效率(93.6 lm/W),色温为 4 023 K。

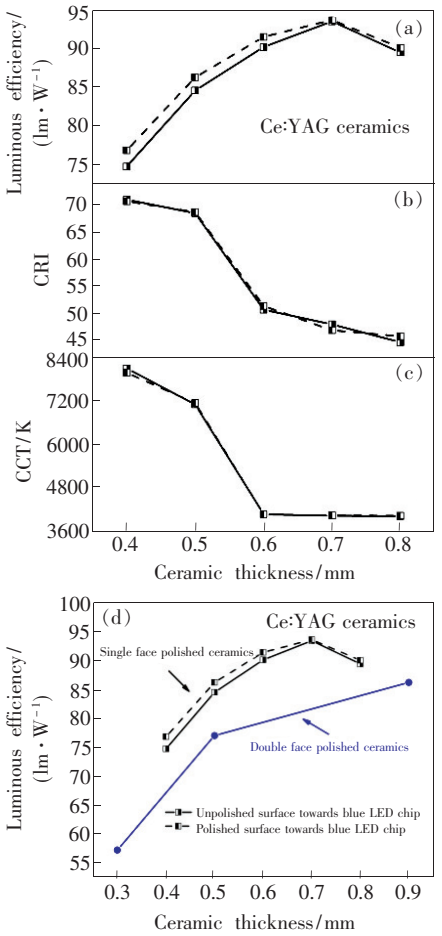

图 6 单面抛光、不同厚度(0.4 ~ 0.8 mm)的 Ce: YAG 陶瓷/LED(3.2 V × 0.3 A)原型器件的光色性能对比(实线表示陶瓷未抛光面朝向蓝光 LED 芯片,虚线表示抛光面朝向蓝光 LED 芯片)。(a)光电转换效率;(b)显色指数 CRI;(c)色温 CCT;(d)双面抛光和单面抛光、不同厚度 Ce: YAG 陶瓷/LED 原型器件的光电转换效率对比。

Fig. 6 Changing of luminous efficiency (a), color rendering index CRI (b), and correlative color temperature CCT (c) of single face polished Ce: YAG ceramics based LED prototype devices (3.2 V × 0.3 A) with different thickness (0.4 – 0.8 mm), where solid line represents that unpolished surface towards blue LED chip, dash line represents that polished surface towards blue LED chip. (d) Comparison of photoelectric conversion efficiency of Ce: YAG ceramic/LED prototype devices with different thickness after double-face light and single-face polishing.

如图 6 (d) 所示,实线表示陶瓷未抛光面朝向蓝光 LED 芯片,虚线表示抛光面朝向蓝光 LED 芯片。对于同一厚度的 Ce: YAG 陶瓷,可以发现,无

论陶瓷片的抛光面或未抛光面朝向蓝光 LED 芯片方向，所测得的色温、显色指数和发光效率的数值都很接近，可以认为抛光面的放置方式对光色性能参数几乎无影响。单面抛光陶瓷片保留了一个光洁表面，有利于入射蓝光和发射黄光的出射，另一个相对较粗糙的表面有利于蓝光的散射和与黄光的充分混合，并提高光取出效率[19]。

我们进一步研究了不同厚度单面抛光 Ce：YAG 透明陶瓷片在蓝光 LD 光源功率从0.8 W（半功率）调至 1.6 W（全功率）激发下的光色性能参数变化情况。如图 7（a）所示，与蓝光 LED 芯片激发结果类似，厚度为 0.7 mm 的 Ce：YAG 陶瓷片具有相对更高的发光效率（可达 178.5 lm/W，色温 3 973 K，显色指数 33.1）；由于更高的激发光源功率导致更为明显的热致光衰，当将蓝光 LD 光源功率从 0.8 W（半功率）调至 1.6 W（全功率）时，出现了整体发光效率下降的现象。同样，如图 7（a）、（b）所示，陶瓷的抛光面或未抛光面放置方向对测得的光电转换效率和显色指数未产生明显的影响。显色指数整体低于蓝光 LED 激发下的情况，可能是由于激发源为蓝光激光，呈现窄峰发射的特点，因而与 Ce：YAG 发出的黄绿光的白光混色效果不及 LED 的宽谱发射效果好[15]。陶瓷抛光面放置方向和激光功率对色温的影响随陶瓷厚度的增加而降低至一个相近的值（3 950 K 左右），说明蓝黄光的比例和混合效果在陶瓷较薄的情况下受表面粗糙度的影响更明显，这与蓝光 LED 激发时的趋势不同（图 6）。

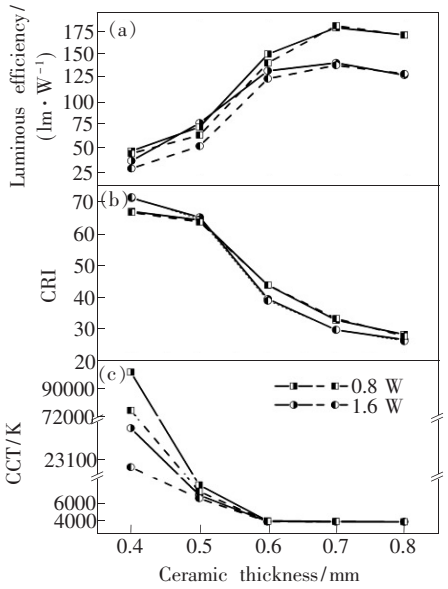

图 7　不同厚度单面抛光 Ce：YAG 透明陶瓷/LD 原型器件的光色性能对比（LD 功率通过旋钮调节为半功率（0.8 W，方块）与全功率输出（1.6 W，圆形），实线为未抛光面朝向蓝光 LD 光源出光孔，虚线为抛光面朝向蓝光 LD 光源出光孔）。（a）光电转换效率；（b）显色指数 CRI；（c）色温 CCT。

Fig. 7　Changing of luminous efficiency（a），color rendering index CRI（b），and correlative color temperature CCT（c）of single face polished Ce：YAG ceramics based LD prototype devices（0.8 W，square；1.6 W，circle），where the solid line represents that the unpolished surface towards blue LD source，the dash line represents that the for polished surface towards blue LD source.

图 8 为单面抛光的 Ce：YAG 透明陶瓷片（厚度 0.5 mm）分别被蓝光 LED 芯片和蓝光 LD 光源激发时的光谱功率分布图。图 8（b）中 LD 发出的蓝光半高宽比图 8（a）中的 LED 蓝光更窄，蓝光激光被部分转换为波长为 530 nm 左右的黄绿色光，测得的色温偏高（CCT：7 200 K），显色指数较低（CRI：69）。对比双面抛光的 Ce：YAG 陶瓷/LED 原型器件（图 4），目前这个结果也说明单面抛光 Ce：YAG 透明陶瓷片在高功率固态照明上更具有应用潜力，即在较高的光源功率下以相对较

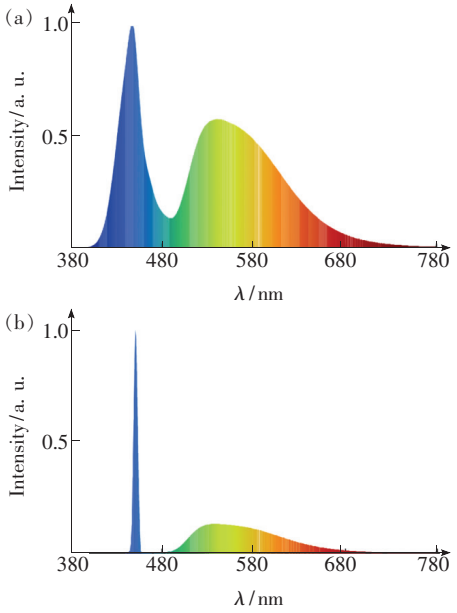

图 8　厚度 0.5 mm 的单面抛光 Ce：YAG 透明陶瓷原型器件光谱功率分布图。（a）LED（3.2 V×0.3 A）；（b）LD（功率 1.6 W）。

Fig. 8　Spectral distribution of single-face polished Ce：YAG ceramic based prototype devices（thickness：0.5 mm）.（a）Blue LED（3.2 V × 0.3 A）.（b）Blue LD（1.6 W）.

薄的陶瓷组装原型器件就可获得较优的综合性能,具有降低照明器件和材料成本的重要意义。

图9进一步显示了不同厚度(0.4,0.5,0.6,0.7,0.8 mm)单面抛光Ce:YAG透明陶瓷在蓝光LED芯片(3.0 V×0.3 A)及蓝光LD光源(半功率0.8 W,全功率1.6 W)激发下的CIE色坐标图。对于厚度为0.4~0.5 mm较薄的Ce:YAG陶瓷,无论是LED芯片或是LD光源激发,其CIE色坐标均位于蓝-白光区。而对于LED激发模式,陶瓷厚度在0.6~0.8 mm的Ce:YAG/LED原型器件的CIE色坐标都位于(0.42,0.54)附近(黄光区),坐标位置非常接近,坐标误差≤0.01,相较图3所示的厚度为2.3 mm的双面抛光陶瓷片与LED组装的原型器件的色坐标(0.40,0.54),又略向黄光区域移动。对于LD激发模式,陶瓷0.6~0.8 mm厚的Ce:YAG/LD原型器件的色坐标位于(0.43,0.55)附近,色坐标位置同样非常接近,坐标误差≤0.01,相较Ce:YAG/LED原型器件的色坐标,进一步向黄光区小幅度移动。由此可见,单面抛光0.4~0.5 mm厚的Ce:YAG陶瓷/LED原型器件与Ce:YAG陶瓷/LD原型器件均可实现近白光发射,具有应用于高功率固态照明器件的潜力。需要说明的是,基于陶瓷在复合结构和多组分掺杂上的优势,目前原型器件显色指数偏低的问题可以通过叠加红光和绿光陶瓷薄片或复合结构以及组分调控的途径适度补偿红光及绿光成分来加以改善[23]。

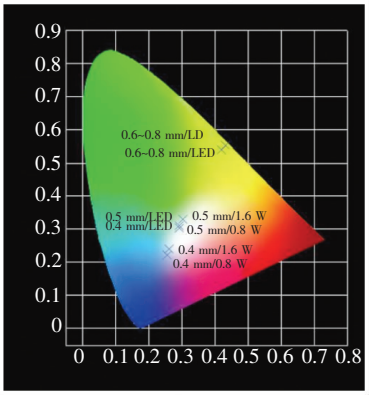

图9 不同厚度单面抛光(厚度0.4~0.8 mm)的Ce:YAG陶瓷/LED(3.2 V×0.3 A)及Ce:YAG陶瓷/LD(0.8 W/1.6 W)原型器件的CIE色坐标图

Fig. 9 CIE of single-face polished Ce:YAG ceramics based LED(3.2 V×0.3 A) or LD(0.8 W/1.6 W) prototype devices with different thickness(0.4~0.8 mm)

4 结 论

采用真空烧结制备了Ce^{3+}掺杂YAG透明陶瓷,系统研究了陶瓷的厚度和表面粗糙度对光色性能的影响。

(1)对双面抛光的Ce:YAG陶瓷,采用大功率蓝光LED芯片(3.2 V×0.3 A)激发,在透射模式下,厚度为1.8 mm的Ce:YAG透明陶瓷(双面抛光)获得最高103 lm/W的光电转换效率,色温为4 343 K;陶瓷厚度在0.3~0.9 mm范围内,组装的Ce:YAG陶瓷/LED原型器件的光电转换效率为最高,可达87.2 lm/W,显色指数为60~72,有望应用于车灯或广场等有远距离、高亮度照明需求的场合。

(2)通过单面抛光引入表面粗糙度,使Ce:YAG陶瓷基照明原型器件的光色性能得到明显提升。在透射模式和大功率LED/LD激发下,陶瓷厚度0.4~0.8 mm范围的原型器件的综合光色性能较好:在LED激发下,Ce:YAG陶瓷/LED原型器件获得了最高达93.6 lm/W的光电转换效率;在LD激发下,Ce:YAG陶瓷/LD原型器件获得了最高达178.5 lm/W的光电转换效率。

(3)相对双面抛光的陶瓷而言,单面抛光由于引入了表面粗糙度,导致入射的蓝光形成散射,蓝光和黄光的混合效果更好,最终使Ce:YAG透明荧光陶瓷在更低的厚度上实现了更高的发光效率,有利于器件的低成本与小型化。

参 考 文 献:

[1] KIM Y H, VISWANATH N S M, UNITHRATTIL S, *et al.*. Review—phosphor plates for high-power LED applications: challenges and opportunities toward perfect lighting [J]. *ECS J. Solid State Sci. Technol.*, 2018, 7(1): R3134-R3147.

[2] CHO J, PARK J H, KIM J K, *et al.*. White light-emitting diodes: history, progress, and future [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2017, 11(2): 1600147-1-17.

[3] YAO Q, HU P, SUN P, *et al.*. YAG: Ce^{3+} transparent ceramic phosphors brighten the next-generation laser-driven lighting

[J]. *Adv. Mater.*, 2020,32(19):1907888.

[4] XU J,YANG Y,GUO Z Q,*et al.*. Comparative study of Al_2O_3-YAG: Ce composite ceramic and single crystal YAG: Ce phosphors for high-power laser lighting [J]. *Ceram. Int.*, 2020,46(11):17923-17928.

[5] PENILLA E H,SELLAPPAN P,DUARTE M A,*et al.*. Bulk polycrystalline ceria-doped Al_2O_3 and YAG ceramics for high-power density laser-driven solid-state white lighting: effects of crystallinity and extreme temperatures [J]. *J. Mater. Res.*, 2020,35(8):958-971.

[6] ZHANG X J,SI S C,YU J B,*et al.*. Improving the luminous efficacy and resistance to blue laser irradiation of phosphor-in-glass based solid state laser lighting through employing dual-functional sapphire plate [J]. *J. Mater. Chem.* C, 2019, 7(2):354-361.

[7] WIERER JR J J,TSAO J Y,SIZOV D S. Comparison between blue lasers and light-emitting diodes for future solid-state lighting [J]. *Laser Photonics Rev.*, 2013,7(6):963-993.

[8] 陈亮,王健超,潘涌,等. 车用激光照明研究进展及关键技术分析 [J]. 应用激光, 2018,38(6):1044-1048.
CHEN L,WANG J C,PAN Y,*et al.*. Research progress and key technology analysis of laser illumination for automobile [J]. *Appl. Laser*, 2018,38(6):1044-1048. (in Chinese)

[9] 陈天殷. 智能时代的汽车光源与照明 [J]. 汽车电器, 2019(9):8-13.
CHEN T Y. Car lighting and light source in the intelligent age [J]. *Auto Electric Parts*, 2019(9):8-13. (in Chinese)

[10] 康健,张乐,甄方正,等. 高流明密度激光照明用光转换材料 [J]. 化学进展, 2019,31(2-3):322-336.
KANG J,ZHANG L,ZHEN F Z,*et al.*. Light-conversion materials for high-lumen density laser illumination [J]. *Prog. Chem.*, 2019,31(2-3):322-336. (in Chinese)

[11] 郑飞,茅云蔚,杨波波,等. 基于 YAG: Ce^{3+} 荧光粉复合 Eu^{3+} 掺杂荧光玻璃的激光照明器件 [J]. 发光学报, 2019, 40(7):842-848.
ZHENG F,MAO Y W,YANG B B,*et al.*. Laser lighting device based on YAG: Ce^{3+} phosphor composite Eu^{3+} doped phosphor-in-glasses [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2019,40(7):842-848. (in Chinese)

[12] PARK K W,LIM S G,DERESSA G,*et al.*. High power and temperature luminescence of $Y_3Al_5O_{12}$: Ce^{3+} bulky and pulverized single crystal phosphors by a floating-zone method [J]. *J. Lumin.*, 2015,168:334-338.

[13] WANG L,XIE R J,SUEHIRO T,*et al.*. Down-conversion nitride materials for solid state lighting: recent advances and perspectives [J]. *Chem. Rev.*, 2018,118(4):1951-2009.

[14] 朱宁. 白光激光照明对荧光材料的要求 [J]. 照明工程学报, 2018,29(3):58-61.
ZHU N. Requirements identification on phosphor materials to laser illumination systems [J]. *China Illum. Eng. J.*, 2018,29(3):58-61. (in Chinese)

[15] XU J,THORSETH A,XU C,*et al.*. Investigation of laser-induced luminescence saturation in a single-crystal YAG: Ce phosphor: towards unique architecture, high saturation threshold, and high-brightness laser-driven white lighting [J]. *J. Lumin.*, 2019,212:279-285.

[16] WAETZIG K,KUNZER M,KINSKI I. Influence of sample thickness and concentration of Ce dopant on the optical properties of YAG: Ce ceramic phosphors for white LEDs [J]. *J. Mater. Res.*, 2014,29(19):2318-2324.

[17] LIU G H,ZHOU Z Z,SHI Y,*et al.*. Ce: YAG transparent ceramics for applications of high power LEDs: thickness effects and high temperature performance [J]. *Mater. Lett.*, 2015,139:480-482.

[18] HU S,LU C H,ZHOU G H,*et al.*. Transparent YAG: Ce ceramics for WLEDs with high CRI: Ce^{3+} concentration and sample thickness effects [J]. *Ceram. Int.*, 2016,42(6):6935-6941.

[19] LEE T X,GAO K F,CHIEN W T,*et al.*. Light extraction analysis of GaN-based light-emitting diodes with surface texture and/or patterned substrate [J]. *Opt. Express*, 2007,15(11):6670-6676.

[20] PARK H K,OH J H,KANG H,*et al.*. Hybrid 2D photonic crystal-assisted $Lu_3Al_5O_{12}$: Ce ceramic-plate phosphor and free-standing red film phosphor for white LEDs with high color-rendering index [J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2015,7(8): 4549-4559.

[21] LI K,SHI Y,JIA F Q,*et al.*. Low etendue yellow-green solid-state light generation by laser-pumped LuAG: Ce ceramic [J]. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 2018,30(10):939-942.

[22] 石云,吴乐翔,胡辰,等. Ce: $Y_3Al_5O_{12}$ 透明陶瓷在白光 LED 中的应用研究 [J]. 激光与光电子学进展, 2014,

51(5):052302-1-6.

SHI Y, WU L X, HU C, *et al*.. Study of Ce: $Y_3Al_5O_{12}$ transparent ceramics for application of white light emiting diode [J]. *Laser Optoelectron. Prog.*, 2014, 51(1):052302-1-6. (in Chinese)

[23] HU C, SHI Y, FENG X Q, *et al*.. YAG: Ce/(Gd, Y)AG: Ce dual-layered composite structure ceramic phosphors designed for bright white light-emitting diodes with various CCT [J]. *Opt. Express*, 2015, 23(14):18243-18255.

[24] LEE D H, JOO J Y, LEE S K. Modeling of reflection-type laser-driven white lighting considering phosphor particles and surface topography [J]. *Opt. Express*, 2015, 23(15):18872-18887.

[25] 靳亚硕,郭向朝,曹顿华,等. 激光激发 Ce: YAG 单晶与陶瓷的发光性能 [J]. 中国激光, 2017, 44(10):1003001-1-8.

JIN Y S, GUO X C, CAO D H, *et al*.. Luminescence properties of Ce: YAG single crystals and ceramics under laser excitation [J]. *Chin. J. Lasers*, 2017, 44(10):1003001-1-8. (in Chinese)

[26] BLASSE G, BRIL A. Investigation of some Ce^{3+}-activated phosphors [J]. *J. Chem. Phys.*, 1967, 47(12):5139-5145.

[27] BACHMANN V, RONDA C, MEIJERINK A. Temperature quenching of yellow Ce^{3+} luminescence in YAG: Ce [J]. *Chem. Mater.*, 2009, 21(10):2077-2084.

郑哲涵(1995 -),男,福建福州人,硕士研究生,2017 年于合肥工业大学获得学士学位,主要从事无机荧光材料的高通量设计、实验筛选及应用基础的研究。

E-mail: zhengzhehan123456@163.com

刘茜(1958 -),女,湖南临湘人,博士,研究员,1994 年于中国科学院上海硅酸盐研究所获得博士学位,主要从事基于材料基因组工程的新型光功能材料高通量设计与制备、性能优化和新物相发现等方面的应用基础研究。

E-mail: qianliu@mail.sic.ac.cn

石云(1978 -),女,安徽砀山人,博士,副研究员,2006 年于中国科学院固体物理研究所获得博士学位,主要从事闪烁材料、白光 LED 和激光照明用荧光材料和材料计算等方面的应用基础研究。

E-mail: shiyun@mail.sic.ac.cn