

文章编号: 1000-7032(2024)03-0434-09

## 无压烧结制备 $Y_2MgAl_4SiO_{12}:Ce^{3+}$ 荧光陶瓷及光学性能

王靖涛<sup>1</sup>, 王 茗<sup>1,2\*</sup>, 王森宇<sup>1</sup>, 徐祖盛<sup>1</sup>, 梁莹盈<sup>1</sup>, 张 瑞<sup>1,2\*</sup>

(1. 桂林理工大学 材料科学与工程学院, 广西 桂林 541004;

2. 广西光电功能材料与器件重点实验室, 广西 桂林 541004)

**摘要:**  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  荧光粉是目前白光 LED 的主要发光材料,但在使用时存在封装树脂因散热不佳而发生老化等问题。本文采用无压烧结制备了  $Y_2MgAl_4SiO_{12}:Ce^{3+}$  透明陶瓷荧光体,用于替代荧光粉体和调控发光性能。首先通过化学共沉淀法制备前驱体粉体,经高温煅烧后采用冷等静压成型,最后在马弗炉中 1 600 °C 煅烧制得透明荧光陶瓷。研究了  $Ce^{3+}$  掺杂浓度和样品厚度对材料性能的影响,其中掺杂量为 0.5% 的样品在 800 nm 处具有 56% 的透过率,在 450 K 下发光强度仍能保持室温强度的 84%。与蓝光芯片组装成器件测试表明,荧光陶瓷在蓝光 LEDs/LDs 的激发下发出白光,其 CIE 色度坐标分别为 (0.307 6, 0.332 9) 和 (0.308 0, 0.331 6), 光效分别为 62.6 lm/W 和 146.3 lm/W。研究结果表明, YMAS:Ce 荧光陶瓷可应用于白光 LEDs/LDs 领域。

**关键词:** 无压烧结;  $Y_2MgAl_4SiO_{12}:Ce^{3+}$ ; 荧光陶瓷; 白光 LEDs/LDs

中图分类号: O482.31; TQ174

文献标识码:

DOI: 10.37188/CJL.20230275

## Preparation and Optical Properties of $Y_2MgAl_4SiO_{12}:Ce^{3+}$ Fluorescent Ceramics by Pressureless Sintering

WANG Jingtao<sup>1</sup>, WANG Ming<sup>1,2\*</sup>, WANG Senyu<sup>1</sup>, XU Zusheng<sup>1</sup>, LIANG Yingying<sup>1</sup>, ZHANG Rui<sup>1,2\*</sup>

(1. College of Materials Science and Engineering, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China;

2. Guangxi Key Laboratory of Optoelectronic Functional Materials and Devices, Guilin 541004, China)

\* Corresponding Authors, E-mail: 2007034@glut.edu.cn; rzhang@glut.edu.cn

**Abstract:**  $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$  (YAG:Ce) phosphor is the main luminous material for white light emitting diode (LED) or laser diode (LD) at present, but it has some drawbacks such as aging due to poor heat dissipation. In this paper,  $Y_2MgAl_4SiO_{12}:Ce^{3+}$  (YMAS:Ce) transparent ceramic fluorophores were prepared by simple pressureless sintering, which can replace traditional fluorescent powder and regulate luminescence performance. The precursor powder was prepared by chemical coprecipitation method and calcined at high temperature. Green body disks were formed by cold isostatic pressing using the sintered powder. Finally, transparent fluorescent ceramics were prepared by calcining the disks at 1 600 °C temperature in a muffle furnace. The effect of  $Ce^{3+}$  doping concentration and sample thickness on the properties of the material was studied. The sample doped 0.5% of  $Ce^{3+}$  possessed 56% transmittance at 800 nm, and its luminescence intensity at 450 K is still maintain 84% of that at room temperature. The device combined with the fluorescent ceramics can emit white light under the excitation of blue LEDs/LDs. The corresponding CIE chromaticity coordinates were (0.307 6, 0.332 9) and (0.308 0, 0.331 6), and the luminous efficiency was 62.6 lm/W and 146.3 lm/W, respectively. The results show that YMAS:Ce fluorescent ceramics can be applied to white LEDs/LDs.

**Key words:** pressureless sintering;  $Y_2MgAl_4SiO_{12}:Ce$ ; fluorescent ceramic; white LEDs/LDs

收稿日期: 2023-12-10; 修订日期: 2023-12-25

基金项目: 国家自然科学基金(52062008); 广西杰出专家专项基金(2019B06)

Supported by National Natural Science Foundation of China(52062008); Guangxi Distinguished Experts Special Fund(2019B06)

## 1 引言

LED作为一种新型的固态照明技术推动了白光发光材料的快速发展<sup>[1]</sup>。特别是在全球能源短缺、环境恶化、节能减排和环保意识强烈的背景下,LEDs/LDs光源以其发光效率高、耗电少、使用寿命长、绿色无污染等优势而获得了快速发展<sup>[2-3]</sup>。目前,获得白光的解决方案主要是通过黄色荧光粉光转换方法(蓝光芯片+黄色荧光粉),即蓝色光源被黄色荧光粉转换为黄光,黄光与未被吸收的蓝光复合成白光,一般将YAG:Ce黄色荧光粉与环氧树脂或硅胶以一定比例混合涂在蓝色LED芯片上<sup>[4]</sup>。然而,芯片在高功率驱动下会在荧光转换材料中产生严重的热聚集,造成性能劣化,传统封装材料会发生严重的老化现象,使白光LED色坐标发生大幅度偏移,影响器件寿命<sup>[5]</sup>。

为解决器件的发热及老化问题,人们提出用单晶、玻璃陶瓷和透明陶瓷荧光体来替代荧光粉,用于克服高温对封装树脂以及树脂中荧光粉的发光效率和使用寿命的不利影响<sup>[6-9]</sup>。与单晶以及玻璃陶瓷相比,透明陶瓷具有优异的导热性能和力学强度,是目前最有前景的新一代荧光转换材料<sup>[10]</sup>。钇铝石榴石作为制备荧光陶瓷的理想基体,具有各向同性的立方晶体结构,可以减少入射光的散射,其机械性能和热性能优良,通过稀土发光离子的掺杂可以获得性能优异的荧光透明陶瓷<sup>[11-13]</sup>。

为了进一步调控荧光体的发光性能,通过十二面体和八面体空隙位置进行取代掺杂是一种有

效策略,其中开展Mg-Si复合掺杂的研究较为成功。例如,刘永福等在YAG:Ce体系中添加纳米MgO和SiO<sub>2</sub>,通过真空烧结合制备出高质量荧光陶瓷,激光激发光效达到223 lm/W<sup>[14]</sup>;Allix等在采用热等静压设备合成Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>时,通过Mg-Si掺杂获得第二相(Lu/Mg)<sub>4</sub>(Al/Si)<sub>2</sub>O<sub>9</sub>,从而实现发射光谱红移,在564 nm发出橙黄色光<sup>[15]</sup>;张志军团队同样采用真空烧结技术制备了Y<sub>3</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2-x</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>12</sub>:Ce透明陶瓷,透过率高达78%,LED激发光效为95 lm/W,获得3 762 K的低色温<sup>[16]</sup>。

上述荧光陶瓷制备条件较为苛刻,一般需用到热等静压或者真空烧结等昂贵设备,不利于工业化规模生产,探索低成本制备性能优异的荧光陶瓷仍然是一个重要课题。本文通过Mg-Si复合掺杂策略,采用化学共沉淀法结合无压烧结技术成功制备了Y<sub>2</sub>MgAl<sub>4</sub>SiO<sub>12</sub>:Ce<sup>3+</sup>(YMAS:Ce)荧光陶瓷,研究了Ce<sup>3+</sup>掺杂浓度以及样品厚度对发光性能的影响。研究表明,掺杂可以降低石榴石相的形成温度,所制备的样品具有较好的发光性能和热稳定性,有望在白光照明领域获得应用。

## 2 实验

### 2.1 YMAS:Ce荧光陶瓷制备

本文通过化学共沉淀法制备前驱体粉体,选用高纯Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O(99.99%)、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(99.999%)、MgO(99.99%)、Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O(99.999%)、TEOS为原料,按铈掺杂量进行配料(Ce<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>MgAl<sub>4</sub>SiO<sub>12</sub>(x=0.001,0.003,0.005,0.007,0.01)。图1为实验工艺流程图,先将Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MgO粉体溶解在浓HNO<sub>3</sub>

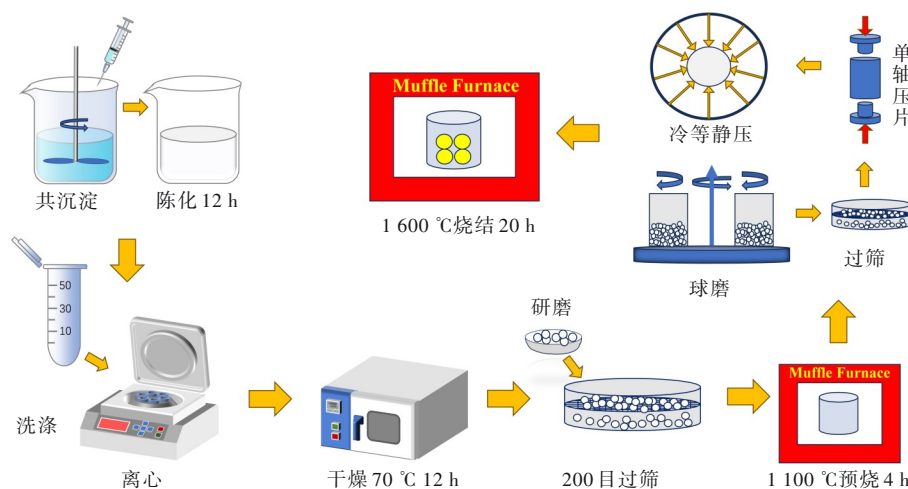


图1 YMAS:Ce陶瓷制备流程图

Fig.1 Flowchart of preparation of YMAS:Ce ceramics

溶液中,之后逐步加入硝酸铈、硝酸铝、TEOS以及5%(wt)的硫酸铵制成混合溶液。本实验使用的沉淀剂为氨水溶液,在冰水浴中,以10 mL/min的速度将混合溶液滴入氨水中产生沉淀;沉淀结束后陈化12 h分离,分别用去离子水和乙醇洗涤三次,将沉淀物干燥后研磨过200目筛网;最后放入马弗炉中在1100 °C烧结4 h,得到YMAS:Ce粉体。将粉体球磨后再次过200目筛,称量一定量的粉体经轴压成型(10 MPa)和冷等静压(250 MPa)压制成直径为20 mm、厚度2 mm的素坯。将素坯在马弗炉中1600 °C烧结20 h后即得荧光陶瓷,将样品打磨并双面抛光至一定厚度(0.1~1.0 mm)。

## 2.2 LEDs/LDs器件组装

将制备的YMAS:Ce荧光陶瓷(厚度为0.1~1.0 mm)固定在商业蓝光LED芯片(3.2 V×0.3 A, 460 nm)或者固定在金属散热器上,外接蓝光LD光源(0.5~2.0 W, 455 nm, 光孔直径5 mm),置于直径50 cm的积分球内。

## 2.3 性能表征

采用X射线粉末衍射仪(X'Pert PRO, PANalytical,  $\text{CuK}\alpha_1$  ( $\lambda=0.154$  nm))管电压为40 kV,管电流为40 mA测定样品物相,使用扫描电子显微镜(Zeiss Gemini SEM 300)观察样品表面微观结构形貌,采用UV/VIS分光光度计(Lambda 950,美国Perkin elmer)测量样品透光率,利用荧光光谱仪(QuantaMaster 8000, HORIBA)测量光致发光激发光谱(PLE)、光致发光发射光谱(PL),采用阿基米德排水法测量样品密度,热导率通过热传导系数测量仪(LW-9389,台湾瑞领)进行测量,使用色度坐标测量仪(EVERFINE HAAS-2000)分析了组装器件的发射光谱、相关色温和显色指数。

## 3 结果与讨论

### 3.1 YMAS:Ce粉体物相和形貌分析

图2(a)是1100 °C烧结4 h后的 $(\text{Ce}_x\text{Y}_{1-x})_2\text{-MgAl}_4\text{SiO}_{12}$ 荧光陶瓷粉末XRD谱。所有样品的衍射峰均与YAG标准卡片(JCPDS72-1315)的衍射峰一致,说明在1100 °C温度下粉体可以形成石榴

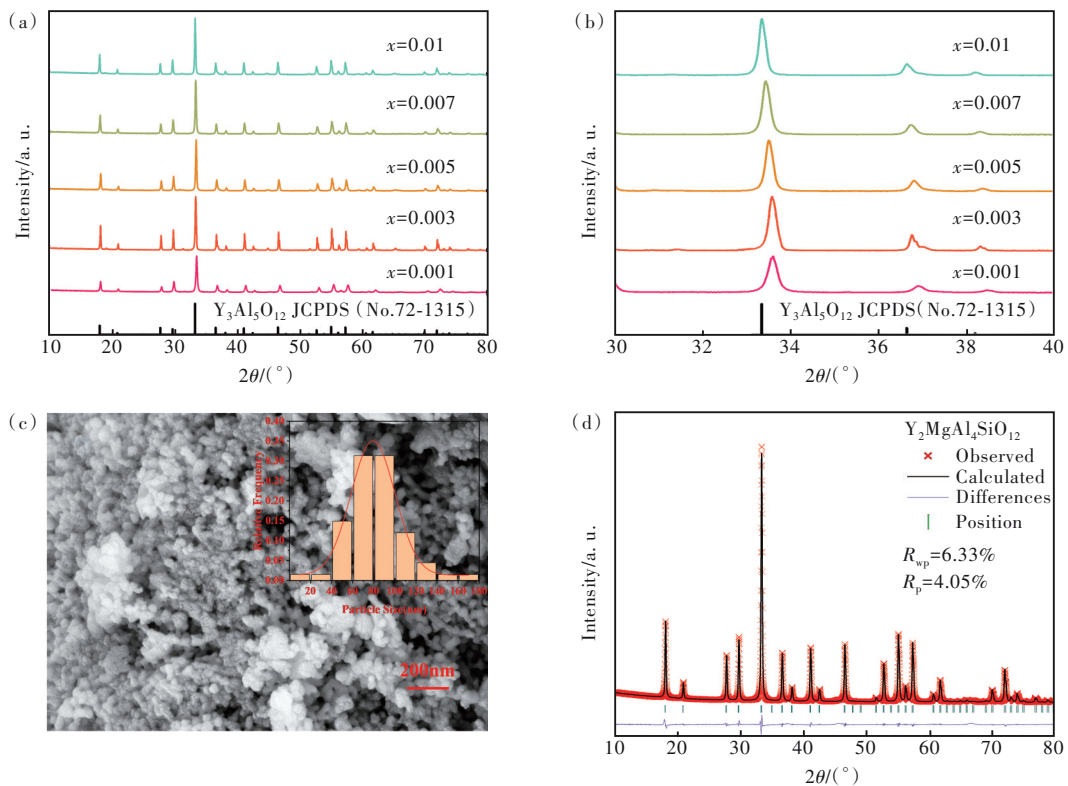


图2 (a)YMAS:xCe( $x=0.001, 0.003, 0.005, 0.007, 0.01$ )的XRD谱;(b)XRD图中 $2\theta$ 在 $30^\circ\sim 40^\circ$ 的放大图;(c)YMAS:Ce前驱体煅烧后的SEM图(插图为粉体颗粒的粒径分布图);(d)YMAS:0.005Ce样品的Rietveld精修图

Fig.2 (a) YMAS:xCe XRD patterns ( $x=0.001, 0.003, 0.005, 0.007, 0.01$ ). (b)  $2\theta$  spread between  $30^\circ$  and  $40^\circ$ . (c) SEM of YMAS:Ce powders after calcination (embedded map is the particle size distribution of powder). (d) The result of Rietveld refinement of the XRD pattern for YMAS:0.005Ce

石晶体结构,与文献报道的结果一致<sup>[17]</sup>。图2(b)是XRD谱中 $30^\circ\sim 40^\circ$ 衍射角的局部放大图,可以清晰地确认没有杂质衍射峰出现,同时最强衍射峰的角度随着 $Ce^{3+}$ 离子掺杂浓度增加而逐渐向小角度方向移动,表明 $Ce^{3+}$ 成功取代 $Y^{3+}$ 的位置导致晶格膨胀( $Ce^{3+}$ 离子半径(0.128 3 nm)大于 $Y^{3+}$ 离子半径(0.115 9 nm))。图2(c)为YMAS:Ce前驱体在 $1\ 100^\circ C$ 煅烧4 h后粉体的SEM图,粉体为球形颗粒,粒径80 nm左右,分散性良好,尺寸较为均一,这也是液相法合成粉体的优势体现。图2(d)是样品YMAS:0.005 $Ce^{3+}$ 的XRD数据Rietveld精修结果,获得的相应数据为 $a=b=c=1.200\ 83\ nm$ , $V=1.731\ 602\ nm^3$ , $R_p=4.05\%$ , $R_{wp}=6.33\%$ , $\chi^2=8.12$ ,结果进一步证明了掺杂导致的晶格畸变<sup>[18]</sup>。

### 3.2 YMAS:Ce荧光陶瓷显微结构分析

$1\ 100^\circ C$ 烧结后的粉体经冷等静压成型后在马弗炉中 $1\ 600^\circ C$ 无压烧结20 h获得致密的荧光陶瓷样品,为考察样品的显微结构,采用扫描电镜观察样品表面,图3即为荧光陶瓷样品的SEM图(样品双面经过研磨抛光)。图3(a)为未掺杂Mg-Si的YAG:Ce样品,可以看出陶瓷存在较多气孔,晶界较为模糊。图3(b)~(f)为掺杂Mg-Si的YMAS: $x$ Ce样品,可以看出Mg-Si的添加大幅提高了陶瓷的致密性,所得样品晶界清晰,气孔较少,从而大大提高了陶瓷的透光率<sup>[19]</sup>,少量的缺陷引起的光散射提高了光取出效率。同时实验还发现,随着 $Ce^{3+}$ 离子掺杂量增加,陶瓷晶粒尺寸进一步缩小,这可能是由于 $Ce^{3+}$ 取代 $Y^{3+}$ 离子导致晶格畸变,从而抑制了晶粒长大<sup>[12]</sup>。表1是

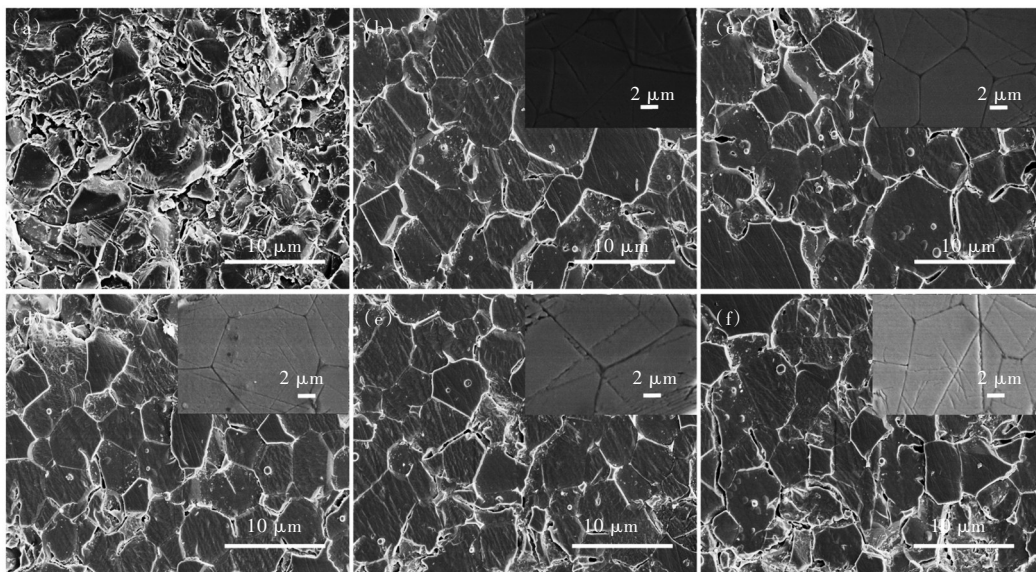


图3 YAG(a)和 $(Ce_xY_{1-x})_2MgAl_4SiO_{12}$ ((b) $x=0.001$ , (c) $x=0.003$ , (d) $x=0.005$ , (e) $x=0.007$ , (f) $x=0.01$ )荧光陶瓷的扫描电子显微镜图

Fig.3 Scanning electron microscopy images of YAG (a) and  $(Ce_xY_{1-x})_2MgAl_4SiO_{12}$  ((b) $x=0.001$ , (c) $x=0.003$ , (d) $x=0.005$ , (e) $x=0.007$ , (f) $x=0.01$ ) fluorescent ceramic

表1 不同 $Ce^{3+}$ 掺杂浓度样品的平均晶粒尺寸及密度统计数据

Tab. 1 Statistical data of the samples doping with different  $Ce^{3+}$  concentrations about the density and average grain size

$x$	平均晶粒尺寸/ $\mu m$	密度/ $(g\cdot cm^{-3})$	理论密度/ $(g\cdot cm^{-3})$	相对密度/%
0.001	$7.2\pm 1.1$	3.61	4.075	88.58
0.003	$6.7\pm 1.3$	3.63	4.077	89.03
0.005	$6.4\pm 1.2$	3.66	4.078	89.74
0.007	$5.6\pm 1.0$	3.67	4.080	89.95
0.01	$5.2\pm 1.3$	3.68	4.082	90.15

不同  $\text{Ce}^{3+}$  浓度样品的晶粒尺寸和密度数据。

### 3.3 YMAS:Ce 荧光陶瓷透光性分析

图 4 是 YMAS:Ce 和 YAG:Ce 荧光陶瓷样品光学直线透过率曲线(样品厚度均为 0.2 mm),插图是日光下拍摄的实物照片。从图中可以看出,没有掺杂 Mg-Si 的 YAG:Ce 样品透光率最低,说明其

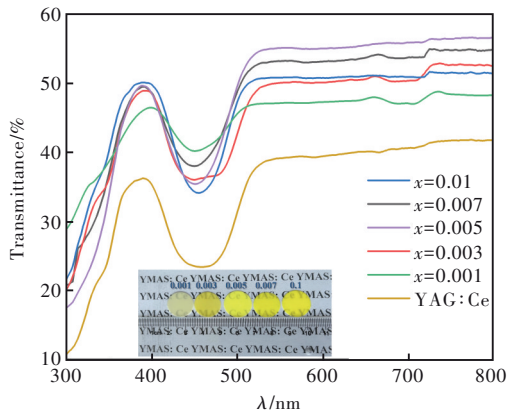


图 4 YMAS:xCe、YAG:Ce 荧光陶瓷的直线透过率曲线  
Fig.4 Linear transmittance curves of YMAS:Ce and YAG:Ce fluorescent ceramic

中存在较多气孔,而掺杂了 Mg-Si 的 YMAS:Ce 样品透光率均大幅提升。研究发现透光率还与  $\text{Ce}^{3+}$  掺杂浓度有关,其中掺杂浓度为 0.5% 的样品在 800 nm 处的直线透过率为 56%,是样品中透过率最高的。实验结果表明,在没有热压及真空烧结条件下也可以制备出透明荧光陶瓷。

### 3.4 YMAS:Ce 荧光陶瓷光致发光性能

图 5(a)是 YMAS:Ce 样品的 PLE 和 PL 光谱。激发谱(发射波长 530 nm)存在两个激发峰,分别位于  $\sim 340$  nm 和  $\sim 467$  nm,这是由于  $\text{Ce}^{3+}$  的电子在晶体场作用下分裂发生的  $4f \rightarrow 5d_2$  和  $4f \rightarrow 5d_1$  跃迁<sup>[20-21]</sup>。而  $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{Si}^{4+}$  的加入不影响样品被蓝光激发,发射光谱(激发波长 467 nm)是以 530 nm 为中心的强黄色光谱带。同时还发现,样品的发光光谱在 340 nm 激发下与 467 nm 激发下波峰类似,证明样品中没有硅酸盐形成,与前面的 XRD 测试结果一致<sup>[22]</sup>。发光强度随着  $\text{Ce}^{3+}$  掺杂浓度增加而增强,当  $\text{Ce}^{3+}$  掺杂浓度为 0.5% 时发光强度最大,随后逐渐减小,这是由于浓度猝灭效应所致。图 5(b)

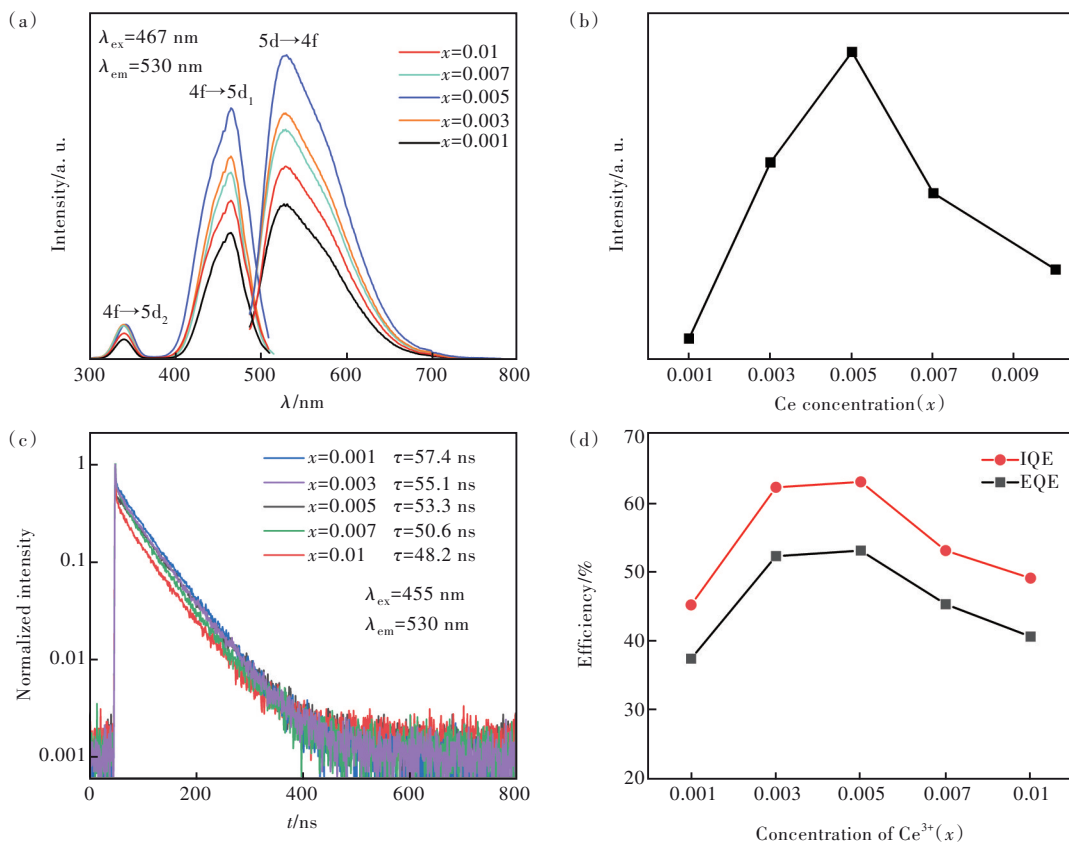


图 5 YMAS:xCe 荧光陶瓷的 PLE、PL 光谱 (a)、荧光发射强度 (b)、荧光衰减曲线 (c) 和  $\lambda=450$  nm 激发下的内/外量子效率 (d)

Fig.5 YMAS:xCe fluorescent ceramics. (a) PLE, PL spectra. (b) Intensity of fluorescence emission. (c) Fluorescence decay curve. (d) Internal/external quantum efficiency at  $\lambda=450$  nm excitation

为不同 $Ce^{3+}$ 掺杂浓度下样品的发射强度对比图。图5(c)是不同 $Ce^{3+}$ 掺杂浓度样品的荧光衰减曲线( $\lambda_{ex}=455\text{ nm}, \lambda_{em}=530\text{ nm}$ ),经过计算,样品的平均衰减时间分别为57.4,55.1,53.3,50.6,48.2 ns,表明随着 $Ce^{3+}$ 浓度增加平均衰减寿命不断减小,这是因为 $Ce^{3+}$ 激活剂之间的能量迁移逐渐增强(浓度猝灭效应)。图5(d)是样品在450 nm光源激发下的量子效率,其中 $Ce^{3+}$ 掺杂浓度为0.5%样品具有最高量子效率,其内量子效率和外量子效率分别为63.1%和53.2%,低于文献报道的YAG:Ce陶瓷的量子效率,可能原因是Mg/Si的引入导致量子效率下降<sup>[6]</sup>。

### 3.5 YMAS:Ce荧光陶瓷发光热稳定性

为考察荧光陶瓷在高温条件下的发光性能,

我们测试了YMAS:0.005Ce样品的变温光致发光曲线,变温范围为298~450 K。如图6(a)所示,随着温度升高,样品的发光强度下降,但下降的幅度较小,在450 K(178 °C)时仍然能达到室温发光强度的84%,表明我们制备的样品具有较好的热稳定性,接近文献中YAG:Ce单晶的热稳定性<sup>[23]</sup>。发光材料的热导率对器件的稳定运行具有重要影响,我们进一步测试了不同 $Ce^{3+}$ 浓度和温度条件下材料的热导率。如图6(b)所示,室温条件下所有样品热导率均高于 $8\text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ,可以实现快速散热而避免器件温度过高。研究还发现,样品的热导率随着掺杂浓度增加而略有降低,但是随着温度升高而大幅下降,这说明温度对荧光陶瓷热导率的影响较大。

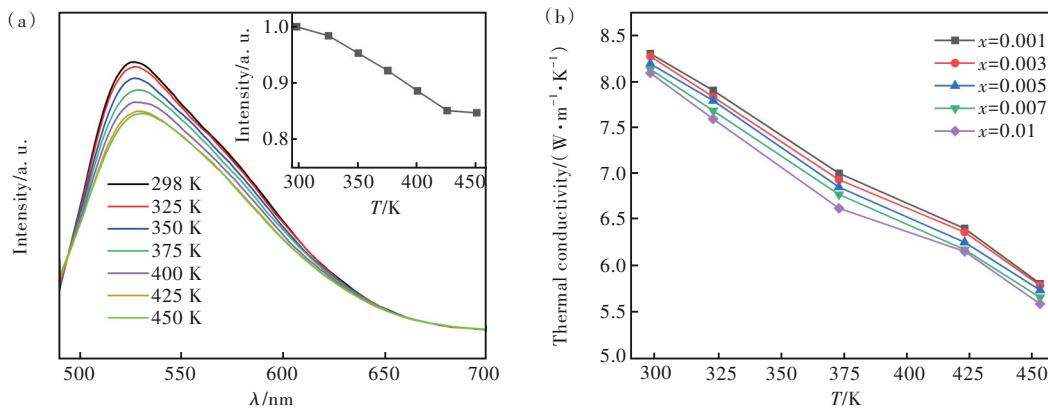


图6 (a)YMAS:0.005Ce荧光陶瓷的光致发光发射光谱以及发光强度与温度的关系;(b) YMAS:xCe陶瓷在不同温度下的热导率

Fig.6 (a) Photoluminescent emission spectra of YMAS:0.005Ce fluorescent ceramics and the relationship between luminescence intensity and temperature. (b) Thermal conductivity of YMAS:xCe ceramics at different temperatures

### 3.6 YMAS:Ce荧光陶瓷组装器件发光性能

为测试样品的实际应用性能,我们选用发光性能最优的YMAS:0.005Ce样品与蓝光LED芯片

(0.48 W,465 nm)组装成原型器件,通过积分球测试陶瓷样品的发光性能。白光的获得主要是通过透过的蓝光与激发荧光陶瓷发出的黄绿光混合而

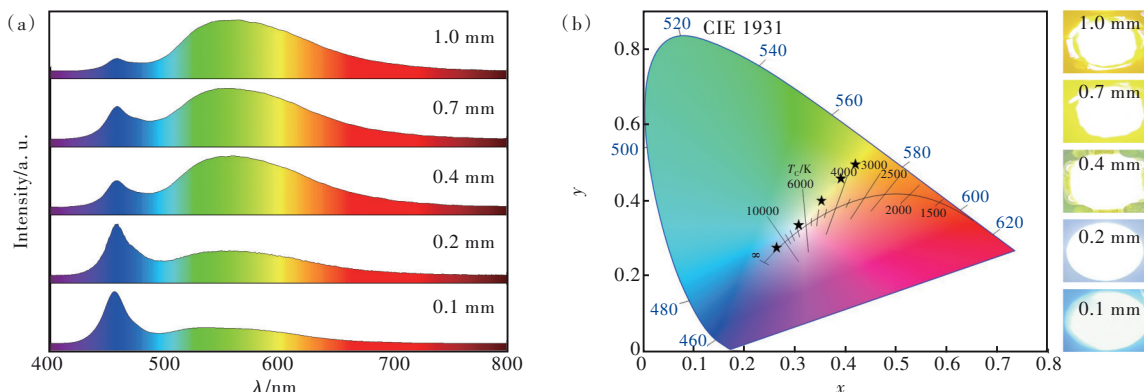


图7 不同厚度样品组装LED器件的发光光谱(a)和CIE色坐标(b)(右侧插图均为器件发光实物图)

Fig.7 Luminescence spectra(a) and CIE color coordinates(b) of LED devices assembled with samples of different thicknesses (the illustration on the right is the physical image of device luminescence)

成,因此调控陶瓷片的厚度可以实现混合光颜色的变化。如图7(a)所示,器件的发光光谱因样品的厚度发生改变,随着陶瓷片厚度增加,蓝光透过率逐渐降低,器件发光颜色从蓝色向白色转变再向黄色变化。其中厚度为0.2 mm的样品 CIE 色度坐标为(0.307 6,0.332 9)(图7(b)),与标准白光色坐标较为接近,发光效率为62.6 lm/W,显色指数达到65.3,通过进一步优化后具有一定的商业应用前景。

此外,为探索荧光陶瓷在大功率照明领域的

应用价值,我们将荧光陶瓷与蓝色激光LD组装成原型器件,图8是器件的激光激发发光性能结果。通过改变电功率可以实现从蓝光到黄光的转变,随着激光功率的增加,发光色坐标从蓝色向黄色区域移动,这是由于荧光陶瓷的荧光转化率不断提高。本次实验制备的荧光陶瓷与蓝光LDs组装后可以获得纯白光,在0.8 W的功率时达到了146.3 lm/W的光效。表2是部分发光色坐标接近白色光源色坐标(0.33,0.33)样品的相关信息。

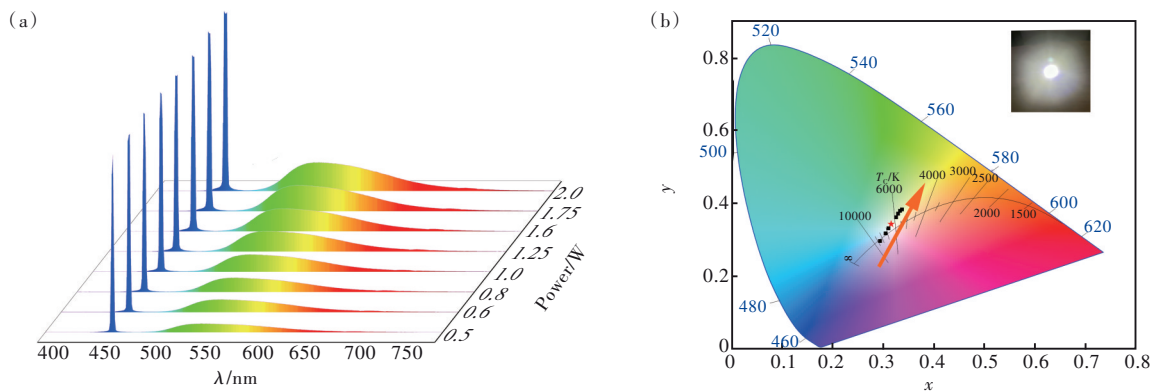


图8 (a)1.0 mm的YMAS:Ce荧光陶瓷原型器件的激光光谱功率分布图;(b)不同功率下YMAS:Ce的CIE色坐标图  
Fig.8 (a)Laser spectra power distribution diagram of 1.0 mm YMAS:Ce fluorescent ceramic prototype device. (b)CIE color coordinate diagram of YMAS:Ce at different powers

表2 YMAS:xCe组装器件的白光发射参数

Tab. 2 White light emission parameters of YMAS:xCe assembled devices

LEDs/LDs	$x$	Thickness/mm	LE/(lm·W <sup>-1</sup> )	CIE	CCT/K	CRI
LED	0.003	0.4	58.5	(0.340 7, 0.379 6)	5 270	62.5
LED	0.005	0.2	62.6	(0.307 6, 0.332 9)	6 740	65.3
LD	0.003	0.2	126.6	(0.300 2, 0.325 2)	7 262	67.2
LD	0.005	1.0	146.3	(0.313 3, 0.342 6)	6 378	63.6

## 4 结 论

本文采用共沉淀法结合无压烧结工艺成功制备出YMAS:Ce透明荧光陶瓷,相比于真空烧结及热压烧结技术,无压烧结可以低成本、大批量制备荧光陶瓷。本实验所制备的YMAS:Ce陶瓷无杂相,晶粒尺寸3~8 μm,晶界完整、清晰,在800 nm处的直线透过率能达到56%。Mg-Si的掺杂不仅能大幅提高陶瓷的致密性和透光率,而且还可以降低稀土元素用量。YMAS:Ce荧光陶瓷的发光

性能较好,在蓝光激发下发出黄绿光,并具有较高的热稳定性。组装器件发光性能测试表明,YMAS:Ce荧光陶瓷在蓝光LED芯片和LD激光激发下可获得相应的白光,白光质量较好,在白光LED领域及高功率LD室外照明方面具有潜在应用价值。

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.20230275>.

## 参 考 文 献:

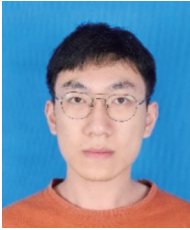
- [ 1 ] KIM T H, WANG W T, LI Q. Advancement in materials for energy-saving lighting devices [J]. *Front. Chem. Sci.*

- Eng.*, 2012, 6(1): 13-26.
- [ 2 ] ARJOCA S, VÍLLORA E G, INOMATA D, *et al.* Temperature dependence of Ce:YAG single-crystal phosphors for high-brightness white LEDs/LDs [J]. *Mater. Res. Express*, 2015, 2(5): 055503.
- [ 3 ] WIERERER J J JR, TSAO J Y, SIZOV D S. Comparison between blue lasers and light-emitting diodes for future solid-state lighting [J]. *Laser Photon. Rev.*, 2013, 7(6): 963-993.
- [ 4 ] LI J, SAHI S, GROZA M, *et al.* Optical and scintillation properties of  $\text{Ce}^{3+}$ -doped LuAG and YAG transparent ceramics: a comparative study [J]. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2017, 100(1): 150-156.
- [ 5 ] STERANKA F M, BHAT J, COLLINS D, *et al.* High power LEDs-technology status and market applications [J]. *Phys. Status Solidi A*, 2002, 194(2): 380-388.
- [ 6 ] ZHOU T, LIU X L, LIU Q S, *et al.* Highly thermal stable and color tunable composite fluorescent ceramics for high-power white LEDs [J]. *Ceram. Int.*, 2022, 48(13): 18716-18722.
- [ 7 ] JIA L C, ZHU J J, BOYARYNTSEVA Y, *et al.* Effect of carbon doping on F-type defects in YAG and YAG:Ce crystals [J]. *Phys. Status Solidi B*, 2021, 258(12): 2100325.
- [ 8 ] YANG L, ZHANG Q, LI F, *et al.* Thermally stable lead-free phosphor in glass enhancement performance of light emitting diodes application [J]. *Appl. Opt.*, 2019, 58(15): 4099-4104.
- [ 9 ] ARMETTA F, SIBEKO M A, LUYT A S, *et al.* Influence of the Ce:YAG amount on structure and optical properties of Ce:YAG-PMMA composites for white LED [J]. *Z. Phys. Chem.*, 2016, 230(9): 1219-1231.
- [ 10 ] OSIPOV V V, ISHCHEKOV A V, SHITOV V A, *et al.* Fabrication, optical and scintillation properties of transparent YAG:Ce ceramics [J]. *Opt. Mater.*, 2017, 71: 98-102.
- [ 11 ] NISHIURA S, TANABE S, FUJIOKA K, *et al.* Properties of transparent Ce:YAG ceramic phosphors for white LED [J]. *Opt. Mater.*, 2011, 33(5): 688-691.
- [ 12 ] 杜傲宸, 杜琪源, 刘欣, 等. 高光效、大功率LEDs/LDs用Ce:YAG透明陶瓷 [J]. *无机材料学报*, 2021, 36(8): 883-892.
- DU A C, DU Q Y, LIU X, *et al.* Ce:YAG transparent ceramics enabling high luminous efficacy for high-power LEDs/LDs [J]. *J. Inorg. Mater.*, 2021, 36(8): 883-892. (in English)
- [ 13 ] LIANG M Z, XU J F, QIANG Y C, *et al.*  $\text{Ce}^{3+}$  doped  $\text{BaLu}_2\text{Al}_2\text{Ga}_2\text{SiO}_{12}$ : a novel blue-light excitable cyan-emitting phosphor with ultra-high quantum efficiency and excellent stability for full-spectrum white LEDs [J]. *J. Rare Earths*, 2021, 39(9): 1031-1039.
- [ 14 ] YAO Q, HU P, SUN P, *et al.* YAG:Ce<sup>3+</sup> transparent ceramic phosphors brighten the next-generation laser-driven lighting [J]. *Adv. Mater.*, 2020, 32(19): 1907888.
- [ 15 ] FENG S W, GUO Y C, ALLIX M, *et al.* Biphasic  $\text{Lu}_3\text{MgAl}_3\text{SiO}_{12}$ -based transparent ceramics for uniform laser-diode-driven white lighting [J]. *Cell Rep. Phys. Sci.*, 2022, 3(9): 101044.
- [ 16 ] DU Q P, FENG S W, QIN H M, *et al.* Massive red-shifting of  $\text{Ce}^{3+}$  emission by  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Si}^{4+}$  doping of YAG:Ce transparent ceramic phosphors [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2018, 6(45): 12200-12205.
- [ 17 ] PAN Z F, LI W Q, XU Y, *et al.* Structure and redshift of  $\text{Ce}^{3+}$  emission in anisotropically expanded garnet phosphor  $\text{MgY}_2\text{Al}_4\text{SiO}_{12}:\text{Ce}^{3+}$  [J]. *RSC Adv.*, 2016, 6(25): 20458-20466.
- [ 18 ] MENG Q H, WANG X J, ZHU Q, *et al.* The effects of  $\text{Mg}^{2+}/\text{Si}^{4+}$  co-substitution for  $\text{Al}^{3+}$  on sintering and photoluminescence of  $(\text{Gd}, \text{Lu})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  garnet ceramics [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2020, 40(8): 3262-3269.
- [ 19 ] 李江, 李方圆, 刘欣, 等. 固态照明/显示用荧光陶瓷研究进展 [J]. *发光学报*, 2021, 42(5): 580-604.
- LI J, LI W Y, LIU X, *et al.* Research progress on phosphor ceramics for solid-state lighting/display [J]. *Chin. J. Luminesc.*, 2021, 42(5): 580-604. (in Chinese)
- [ 20 ] BABIN V, BLAZEK K, KRASNIKOV A, *et al.* Luminescence of undoped LuAG and YAG crystals [J]. *Phys. Status Solidi C*, 2005, 2(1): 97-100.
- [ 21 ] ARJOCA S, VÍLLORAE G, INOMATA D, *et al.* High homogeneity, thermal stability and external quantum efficiency of Ce:YAG single-crystal powder phosphors for white LEDs [J]. *J. Ceram. Soc. Japan*, 2016, 124(5): 574-578.
- [ 22 ] SETLUR A A, HEWARD W J, GAO Y, *et al.* Crystal chemistry and luminescence of  $\text{Ce}^{3+}$ -doped  $\text{Lu}_2\text{CaMg}_2(\text{Si}, \text{Ge})_3\text{O}_{12}$



and its use in LED based lighting [J]. *Chem. Mater.*, 2006, 18(14): 3314-3322.

- [ 23 ] ARJOCA S, VÍLLORA E G, INOMATA D, *et al.* Ce:(Y<sub>1-x</sub>Lu<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> single-crystal phosphor plates for high-brightness white LEDs/LDs with high-color rendering ( $Ra > 90$ ) and temperature stability [J]. *Mater. Res. Express*, 2014, 1(2): 025041.



王靖涛(1997-),男,四川成都人,硕士研究生,2020年于黑龙江科技大学获得学士学位,主要从事荧光陶瓷的研究。

E-mail: Wjingtao1231@163.com



张瑞(1986-),男,湖北枣阳人,博士,副教授,2014年于中国科学院福建物质结构研究所获得博士学位,主要从事稀土离子掺杂的LED荧光粉、玻璃陶瓷材料与器件的相关研究。

E-mail: rzhang@glut.edu.cn



王茗(1977-),男,广西兴安人,博士,教授,2007年于中国科学院固体物理研究所获得博士学位,主要从事光催化材料、发光材料的相关研究。

E-mail: 2007034@glut.edu.cn