

文章编号: 1000-7032(2021)04-0478-08

用于白光 LED 的 GGAG:Ce 复合荧光膜制备和性能

张伟杰, 魏钦华*, 唐 高, 陈振华, 秦来顺

(中国计量大学 材料与化学学院, 浙江 杭州 310018)

摘要: 白光 LED 由于发光效率高、寿命长以及节能环保等优点, 已逐渐成为照明行业的主流产品。通常照明用白光 LED 要求高显色指数和低色温。本文采用 $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}:Ce$ (GGAG:Ce) 作为发光粉体、硅胶作为基质材料成功制备了可用于封装白光 LED 的具有一定透明度的 GGAG:Ce 柔性复合荧光膜。通过 X 射线衍射(XRD)、荧光光谱、扫描电子显微镜(SEM)、变温荧光光谱等手段分析了复合荧光膜的物相、形貌及发光性能。结果表明, 该柔性复合荧光膜的主晶相为 GGAG:Ce 晶相, 荧光膜表面平整度较好、柔性较好。GGAG:Ce 复合荧光膜的主激发峰和发射峰分别位于 450 nm 和 540 nm 左右, 属于 Ce^{3+} 的 $5d \rightarrow 4f$ 电子跃迁发光, 衰减时间约为 40 ns 左右。荧光性能表明, 复合荧光膜的最佳复合浓度为 20% 左右, 其显色指数达到 85.1, 色温为 6 295 K。变温荧光光谱表明, 复合荧光膜具有较好的热稳定性, 在白光 LED 中具有潜在的应用前景。

关键词: GGAG:Ce; 复合荧光膜; 白光 LED; 显色指数

中图分类号: TN312.8; O482.31

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20200358

Preparation and Properties of GGAG:Ce Composite Fluorescent Film for White LED

ZHANG Wei-jie, WEI Qin-hua*, TANG Gao, CHEN Zhen-hua, QIN Lai-shun

(School of Materials and Chemistry, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China)

* Corresponding Author, E-mail: weiqinhua1985@163.com

Abstract: White LED has gradually become a mainstream product in the lighting industry due to its high luminous efficiency, long life, energy saving and environmental protection. Generally, white light LEDs for lighting are required to have high color rendering index and low color temperature. In this paper, the GGAG:Ce nano-powder was synthesized by chemical co-precipitation method. And the translucent $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}:Ce$ (GGAG:Ce) flexible composite fluorescent film was prepared successfully by uniformly dispersing the GGAG:Ce nano-powder into the silica gel matrix, which can be used for white light LEDs. The phase construct, morphology and luminescence properties of the composite fluorescent film were discussed by X-ray diffraction(XRD), fluorescence spectroscopy, scanning electron microscope(SEM), and variable temperature fluorescence spectroscopy. The results show that the main crystal phase of composite fluorescent film is GGAG:Ce crystal phase. The main excitation peak and emission wavelength of the GGAG:Ce composite fluorescent film are located at 450 nm and 540 nm, respectively, which belong to the $5d \rightarrow 4f$ electronic transition of Ce^{3+} , and the decay time is about 40 ns. Fluorescence performance shows that the optimal composite concentration of the composite fluorescent film is about 20%, its color rendering index reaches 85.1, and its color temperature is 6 295 K. The variable temperature emission spectra present the composite

收稿日期: 2020-11-25; 修订日期: 2020-12-24

基金项目: 国家自然科学基金(11975220, 51972291)资助项目

Supported by National Natural Science Foundation of China(11975220, 51972291)

fluorescent film has a good thermostability, which has potential application prospects in white LEDs.

Key words: GGAG: Ce; composite fluorescent film; white LED; color rendering index

1 引言

白光LED被认为是21世纪最具发展前景的高新技术^[1-4],其发展与普及能够大大节约能源并且减少温室气体的排放。目前,市场上主流产品实现白光LED的主要方法是将蓝光芯片与黄色荧光粉(主要是Ce:YAG荧光粉)组合^[5-6]。在全球倡导节能减排的背景下,LED以高光效、体积小、方向性好、重量轻、节能、寿命长、耐震动、响应速度快、色彩丰富等特性^[7-9],普遍应用于显示屏、仪表板照明、电话机、交通信号灯、景观照明、家用电器以及汽车防雾灯等领域,成为21世纪照明领域的主导角色^[10]。

由于GGAG:Ce材料具有优异的闪烁性、光输出达61 000 photons/MeV、能量分辨率为4.6% @ 662 keV而被广泛研究,在医学X-CT成像、空间探测、安全系统、高能物理等诸多领域有着巨大的应用潜力^[11-12]。然而,GGAG:Ce作为荧光材料,在LED发光领域方面的应用研究起步较晚^[13],相关报道也较少。仅在2008年韩国研究者Kim等研究了Ce³⁺、B³⁺共掺GGAG材料的荧光性能,表明其在白光LED领域具有潜在的应用前景^[14]。随后,在2017年,宁波材料所罗等报道了GGAG:Ce透明陶瓷在高功率白光LED方面的应用^[15],但未见后续进一步报道。GGAG掺杂Ce³⁺的发光材料与YAG:Ce非常相似,也是将半导体二极管中的蓝色发射转换为Ce³⁺的黄色发光,然后两者互补,发出白光^[16]。GGAG:Ce晶体和陶瓷制备复杂且成本较高,纳米粉体的制备和使用则比较简单。但粉体材料在应用时主要采用环氧树脂直接与蓝光LED芯片进行封装,其存在发光效率较低以及容易老化等问题。

由于复合材料能够利用两种不同材料的优势,起到优势互补的作用,因而逐渐引起人们的关注。目前文献报道主要有量子点/多孔材料、稀土发光材料/SiO₂、有机/无机复合等复合方式,且都表现出了优异的发光性能^[17-19]。其中有机-无机

复合材料具有制备简单、成本低廉等特点,尤其受研究者们的青睐。但国内外基于GGAG:Ce纳米粉体复合材料的相关研究甚少,仅在2017年国外有文献报道将GGAG:Ce粉体与有机物复合制备高性能的有机-无机复合薄膜^[20],表现出优异的闪烁性能,有望应用于医疗X-CT成像中。而有机-无机复合材料在白光LED应用方面的研究仍处于空白状态。

目前,产业化白光LED的封装方式通常是将两种或者两种以上荧光粉与环氧树脂充分混合均匀,滴涂在LED蓝光芯片上,要求封装材料具有高的透光率和光折射率,以及较好的化学稳定性(如绝缘性、耐湿、耐热性等)。硅胶在可见光范围内的透光率整体上大于70%,在464~547 nm这一覆盖绿光和蓝光的区域内,硅胶的透光率达到了80%,说明硅胶具有良好的透明度,其在室温的导热系数为0.185 W·m⁻¹·K⁻¹。同时,硅胶具有良好的化学稳定性和延展性,因此本文选用硅胶作为基质材料。由于传统荧光材料的颗粒比较大,很容易沉淀在LED芯片的上方,LED点亮后在表面会形成光斑,影响LED的光色品质。所以本文选用具有优异荧光性能的GGAG:Ce纳米粉体作为发光中心,采用共沉淀法^[21]和超声混合成功制备了GGAG:Ce纳米粉末和不同浓度的GGAG:Ce/硅胶柔性复合荧光膜。通过XRD、SEM等手段分析了柔性复合荧光膜的物相和表面形貌,采用紫外-可见荧光光谱、变温光谱和荧光寿命研究了柔性荧光膜的发光性能和衰减特性。通过与460 nm发射的蓝光芯片组装成器件,对复合荧光膜的色坐标、显色指数、色温等发光性能进行了测试。

2 实验

2.1 共沉淀法制备GGAG:Ce纳米粉体

根据化学式Gd₃Al₃Ga₂O₁₂:Ce,按照化学计量比称取Gd₂O₃(纯度99.99%)、Ga(NO₃)₃·9H₂O(纯度99.99%)、Al(NO₃)₃·9H₂O(纯度99.99%)、Ce(NO₃)₃·6H₂O(纯度99.99%)等原料。先将

Gd_2O_3 溶于浓硝酸中,待溶液澄清后,依次加入 $Ga(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ 、 $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ 、 $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$,持续搅拌并加热,待溶液完全澄清后,停止搅拌,自然冷却至室温。最终得到的金属盐混合溶液的浓度为 0.3 mol/L 。配制浓度为 3 mol/L 的氨水与碳酸氢铵的混合沉淀液。采用反向滴定的方法,将澄清的金属盐溶液缓慢滴

入沉淀液,控制反应终点的 pH 在 $7 \sim 8$ 之间。滴定结束后,将白色悬浊液继续搅拌 30 min 后,进行真空抽滤。所得沉淀物用去离子水多次淋洗,以去除杂质离子。将制得的沉淀物干燥,研磨过筛后,得到前驱体粉末。将前驱体粉末在 $950 \text{ }^\circ\text{C}$ 下保温 1.5 h ,即得到所需 GGAG:Ce 纳米粉体,制备流程和粉末照片如图 1 所示。

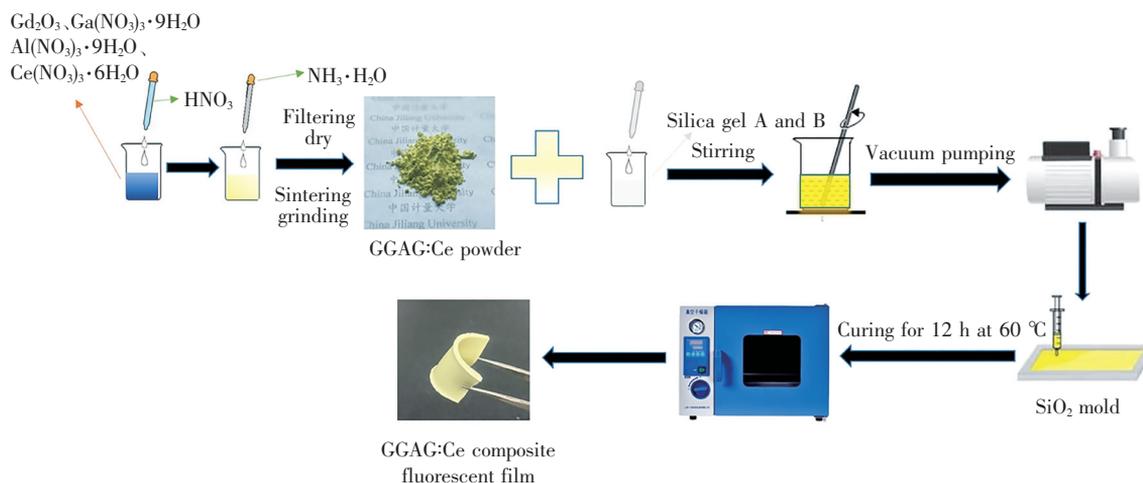


图 1 GGAG:Ce 复合荧光膜的制备工艺流程

Fig. 1 GGAG:Ce composite fluorescent film preparation process

2.2 GGAG:Ce 复合荧光膜制备

按不同质量比分别称取 GGAG:Ce 纳米粉体和硅胶,放入烧杯中进行搅拌并超声分散 1 h ,使其混合均匀。将混合好的胶体进行真空抽滤,去除其中的气泡。将抽滤过后的胶体置于模具中,随后放入真空烘箱 $60 \text{ }^\circ\text{C}$ 干燥 12 h ,最后将复合荧

光膜从模具中取下,即得到厚度为 1 mm 的 GGAG:Ce/硅胶柔性复合荧光膜。荧光膜的厚度和形状可以根据模具的形状和尺寸进行调节,具体的工艺流程如图 1 所示。从图 1、图 2 中可见所得复合荧光膜具有非常好的柔性且具备一定的透过率,随着 GGAG:Ce 含量的增加,透过率逐渐降低。

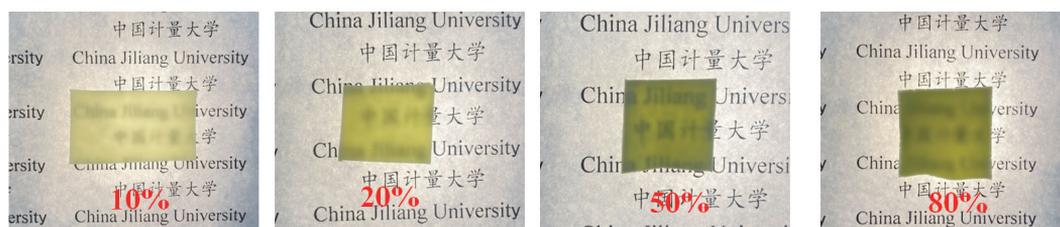


图 2 不同掺杂浓度的 GGAG:Ce 复合荧光膜

Fig. 2 GGAG:Ce composite fluorescent films with different doping concentrations

2.3 性能测试

GGAG:Ce 粉体和复合荧光膜样品的晶体结构采用 Bruker D8 Advance 衍射仪进行表征,采用 $Cu-K\alpha$ 射线源,狭缝宽度为 1 mm ,扫描范围(2θ)为 $10^\circ \sim 80^\circ$,扫描速度为 $10(^\circ)/\text{min}$ 。通过扫描电子显微镜(SEM, Hitachi S-4800)观察 GGAG:Ce 粉末样品的颗粒度、形貌以及在硅胶基体中的分

布情况。使用英国 Oxford 生产的 X-Max 电制冷能谱仪分析样品的组分。样品的常温和变温($室温 \sim 150 \text{ }^\circ\text{C}$)荧光光谱以及荧光寿命测试分别采用日本 Hitach 公司的 F-4600 型荧光分光光度计和英国 Edinburgh 公司 FLS920 全功能型稳态/瞬态荧光光谱仪,前者采用氙灯作为光源,后者采用 Nf 900 纳秒闪光灯为激发源。测试复合荧光膜样

品白光LED器件的光效、色温、显色指数、色坐标等各项光电参数信息时,先将GGAG:Ce复合荧光膜剪成合适规格,然后用热固化胶简单粘压在1W商用蓝光芯片上,固化1h后封装成LED器件进行发光性能测试。测试设备全部采用杭州远方光电信息股份有限公司的stc-4000快速光谱仪和PMS-80可见光谱分析系统。

3 结果与讨论

图3为GGAG:Ce纳米粉体和柔性复合荧光膜的XRD曲线,与标准卡片 $Gd_3Ga_3Al_2O_{12}$ (PDF#46-0448)进行比对可以发现,粉体和复合荧光膜的衍射峰位置基本一致,且都与标准卡片吻合,无其他杂峰,即所得样品的主晶相为GGAG:Ce物相。说明通过本实验得到了所需的GGAG物相,即成功制备了GGAG:Ce纳米粉体和GGAG:Ce/硅胶柔性复合荧光膜,通过与硅胶复合后并没有改变GGAG:Ce的特性。SEM和能量色散谱仪(EDS)测试结果如图4所示。图4(a)是GGAG:Ce纳米粉体形貌图,从图中可以看出,用化学共沉淀法制备的粉体呈近球状,形态差异不大,表面比较光滑,有一定程度的颗粒团聚,粒径约为100 nm。图4(b)为GGAG:Ce复合荧光膜横截面SEM图,从图中可以看出,GGAG:Ce粉体比较均匀地分布在复合荧光膜内部,并且没有粉体沉淀现象发生,保障了发光的均匀性。对其中的颗粒区域进行了EDS分析,如图4(c)所示。可以看出,颗粒的组分主要为Gd、Ga、Al、O、Ce、Au元素,其中Au元素来源于测试所用金靶,未发现其他元素的存在,说明所

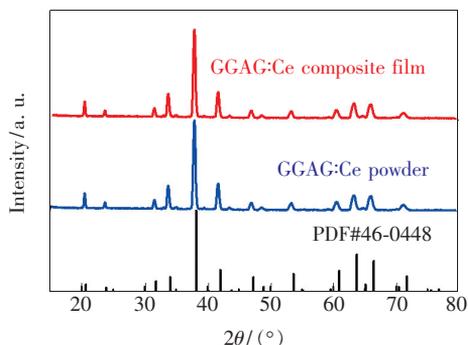


图3 GGAG:Ce纳米粉体和GGAG:Ce复合荧光膜XRD图

Fig.3 XRD pattern of GGAG:Ce nano powder and GGAG:Ce composite fluorescent film

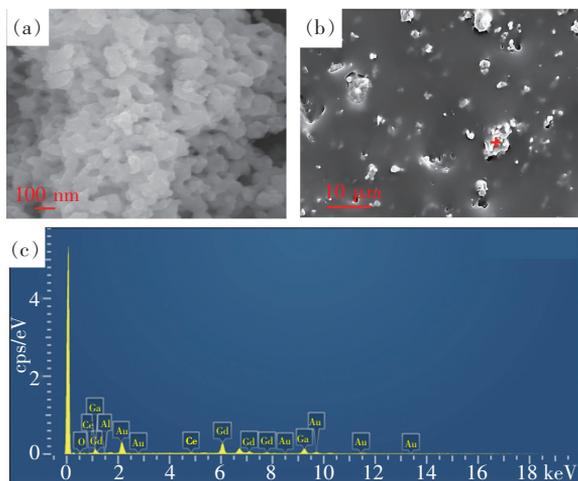


图4 (a)GGAG:Ce粉体SEM图;(b)GGAG:Ce复合荧光膜SEM图;(c)GGAG:Ce复合荧光膜EDS光谱。

Fig.4 SEM image of GGAG:Ce powder(a) and composite fluorescent film(b). (c)EDS spectrum of GGAG:Ce composite fluorescent film.

制备样品为GGAG:Ce/硅胶复合荧光膜,与XRD结果基本一致。

不同组分复合荧光膜的紫外-可见荧光光谱结果如图5(a)所示。从图5(a)中可以发现所有荧光膜样品有两个显著的激发峰,分别位于340 nm和450 nm,属于典型的 Ce^{3+} 的4f-5d电子跃迁,说明GGAG:Ce复合荧光膜与蓝光LED芯片有良好的匹配性。复合荧光膜的最强发射峰位于540 nm左右,处于黄光区域,属于 Ce^{3+} 的5d₁能级到4f能级的特征发射^[22]。由此可知,制备的GGAG:Ce复合荧光膜可以有效地被蓝光激发产生黄光,说明复合荧光膜可用作白光LED器件的封装。与图5(b)中GGAG:Ce粉体的激发发射峰相比较,可以发现,粉末与硅胶复合后,发光峰的中心位置基本没有发生改变。图5(c)为不同浓度的GGAG:Ce复合荧光膜的发射峰积分强度,通过比较可以发现,随着掺杂浓度的增加,发光强度在20%后趋于稳定。图5(d)为GGAG:Ce复合荧光膜的衰减曲线图,通过OriginPro 9.1采用单指数曲线拟合:

$$y = y_0 + A_1 e^{-x/\tau_1}, \quad (1)$$

其中 A_1 为振幅, y_0 是基线, τ_1 是复合荧光膜的荧光寿命时间。衰变时间 $\tau_1 = 39.6$ ns,与报道的GGAG:Ce晶体^[23]和透明陶瓷^[24]的数据基本相近。

将不同浓度的复合荧光膜与460 nm蓝光LED芯片耦合,封装成LED光源并进行发光性能

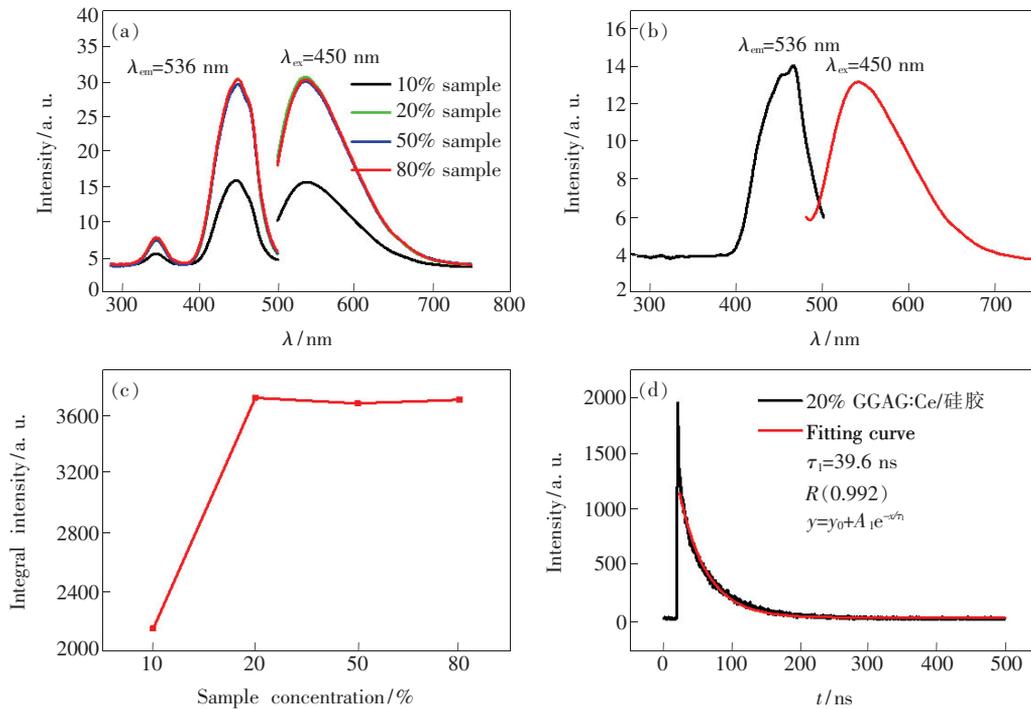


图 5 (a)不同浓度 GGAG:Ce 复合荧光膜的激发发射光谱;(b)GGAG:Ce 粉末的激发发射光谱;(c)GGAG:Ce 复合荧光膜的发射峰强度与浓度积分图;(d)GGAG:Ce 复合荧光膜荧光衰减。

Fig. 5 PLE and PL spectra with different concentrations of GGAG:Ce composite fluorescent films($\lambda_{em} = 536 \text{ nm}$)(a) and GGAG:Ce powder(b). (c)PL integral intensity of GGAG:Ce composite fluorescent films with different concentrations. (d) Fluorescence decay curve of GGAG:Ce composite fluorescent film.

测试。如图 6 所示,随着 GGAG:Ce 纳米粉体浓度的增加,色坐标的值从(0.218 4, 0.203 3)变为(0.374 8,0.455 6),即从蓝光区域逐渐向黄光区移动。当复合浓度为 20%时,位于白光区域,色坐标值为(0.315 3,0.341 3),接近太阳光值(0.33,0.33)。表 1 为复合荧光膜与蓝光芯片耦

合后测试所得的各项性能参数。从表 1 中可以发现,随着 GGAG:Ce 浓度的增加,色温逐渐降低,主要是由于浓度增大后,黄光成分逐渐增加引起。光效呈现先增大后减小的趋势,浓度为 20%时达到最大值 18.55 lm/W。这主要是由于当浓度超过 20%后,随着浓度的增加,荧光粉颗粒团聚严重,使荧光膜的透光性降低,散射变得严重,导致复合荧光膜的光效降低。后续可以通过改变荧光粉在硅胶基质中分散的均匀性和降低荧光膜的厚度来改善复合荧光膜的光效。浓度为 20%时,显色指数最高为 85.1。但在 80%时,色温与显色指数出现异常点,可能是随着浓度的增加,荧光粉的分散均匀性变差导致,具体原因有待进一步确认。图 7 为 20% GGAG:Ce 复合荧光膜的 LED 器件的光致发光光谱。从图 7 可见,本文中的白光主要是由 GGAG:Ce 复合荧光膜发射的黄光与芯片的蓝光相结合形成,其中 GGAG:Ce 的浓度为 20%时性能最佳,色温为 6 295 K,光效为 18.55 lm/W,色坐标位于(0.315 3,0.341 3),显色指数为 85.1。结果表明,这种采用柔性复合荧光膜与蓝光芯片相结合的方式基本能满足日常照明的需求。

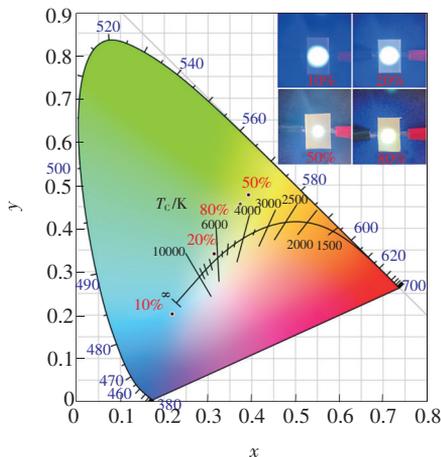


图 6 不同 GGAG:Ce 浓度复合荧光膜的色坐标图

Fig. 6 CIE color coordinates of GGAG:Ce composite fluorescent films with different doping concentrations film encapsulated white LED

表1 GGAG:Ce复合荧光膜封装白光LED的各项性能

Tab.1 Performance of GGAG:Ce composite fluorescent film for white LED

掺杂浓度/%	相关色温/K	光效/(lm · W ⁻¹)	显色指数	色坐标
10	>10 000	17.68	69.6	(0.218 4,0.203 3)
20	6 295	18.55	85.1	(0.315 3,0.341 3)
50	4 261	4.36	67.7	(0.393 4,0.477 0)
80	4 548	2.21	70.4	(0.374 8,0.455 6)

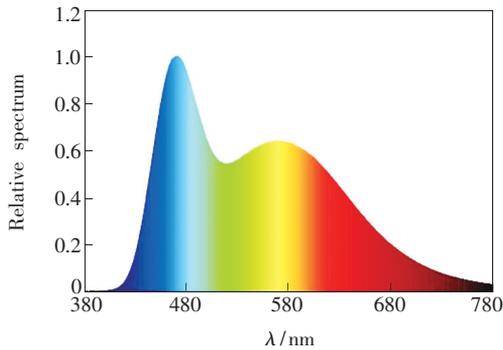


图7 20% GGAG:Ce复合荧光膜的光致发光光谱

Fig.7 Photoluminescence spectrum of 20% GGAG:Ce composite fluorescent film

热稳定性对于白光LED器件非常重要,因此,本文对20% GGAG:Ce/硅胶复合荧光膜进行了变温荧光测试。测试结果如图8所示(λ_{ex} = 460 nm)。从图8(a)可以看出,随着温度升高,复合荧光膜的PL光谱强度逐渐降低。这主要是由于随着温度升高,激活了激发态声子的活性,而这些能量使得激发态与基态能级之间发生重叠,导致了激发态到基态的非辐射跃迁增强,造成发光

强度降低。复合荧光膜在不同温度下的发光强度变化情况如图8(a)中的插图所示,从插图可以看出,随着温度升高,复合荧光膜的发光强度逐渐降低。当温度为373 K时,发光强度依然保持在室温的50%,说明合成的复合荧光膜拥有良好的热稳定性。

为了进一步分析复合荧光膜的热稳定性,我们使用 Arrhenius equation^[25]来计算复合荧光膜热猝灭时的活化能(ΔE)。方程式如下:

$$I_T = \frac{I_0}{1 + \exp(-\Delta E/kT)}, \quad (2)$$

其中,I_T为复合荧光膜在测试温度下的PL强度,I₀是复合荧光膜原始的PL强度,k为玻尔兹曼常数(k = 8.629 × 10⁻⁵ eV/K),ΔE是热猝灭活化能。GGAG:Ce复合荧光膜的热猝灭活化能如图8(b)所示。通过线性拟合,GGAG:Ce复合荧光膜的活化能约为0.383 eV,略高于传统商业YAG:Ce³⁺荧光粉的ΔE值(约0.3 eV)。ΔE的值越大,辐射跃迁的势垒越大,热稳定性越好。因此,复合荧光膜拥有较好的热稳定性^[26-27]。

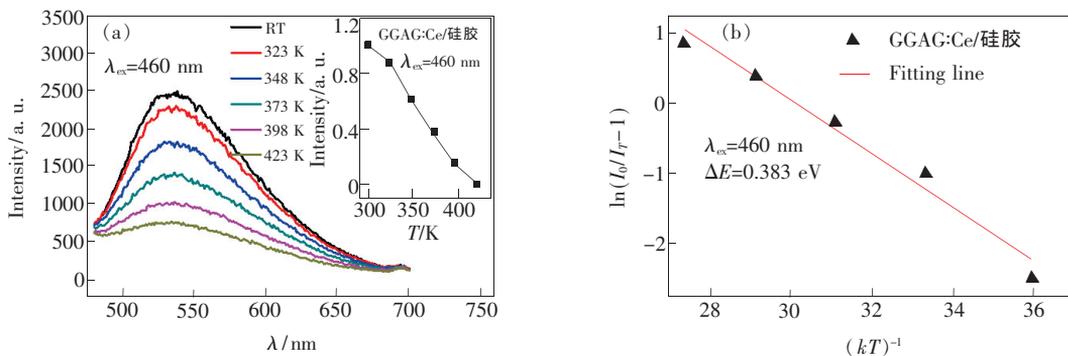


图8 (a)GGAG:Ce复合荧光膜的变温光谱,插图是发光强度和温度之间的关系;(b)GGAG:Ce复合荧光膜的活化能。
Fig.8 (a)Variable temperature emission spectra of GGAG:Ce composite fluorescent films. The inset is the relationship between luminous intensity and temperature. (b)Thermal activation energy of GGAG:Ce composite fluorescent film.

4 结 论

本文通过化学共沉淀法和超声分散技术成功

制备了Gd₃Ga₃Al₂O₁₂:Ce纳米粉体和具有一定透明度的GGAG:Ce/硅胶柔性复合荧光膜。XRD结果表明,复合荧光膜仍然保持GGAG:Ce晶相。

SEM 结果表明,GGAG: Ce 荧光粉成功镶嵌在硅胶基质中,分散较为均匀。荧光光谱结果表明,复合荧光膜的激发波长为 450 nm,发射波长为 536 nm,属于 Ce^{3+} 的 4d-5f 跃迁发光,与蓝光芯片具有很好的匹配度,白光发射主要由荧光膜的黄光与芯片的蓝光组合而成。所得白光的色坐标值、

色温、光效以及显色指数都随 GGAG: Ce 浓度的变化而变化。当浓度为 20% 时,显示出较好的色温和显色指数。同时,GGAG: Ce/硅胶复合荧光膜具有柔性好、无污染、制备工艺简单、成本低廉等优点。除了可应用于白光 LED 照明领域外,在可穿戴显示领域也具有潜在的应用前景。

参 考 文 献:

- [1] PEAKER A R. Efficiency peaking in red-light-emitting gallium-phosphide diodes [J]. *Electron. Lett.*, 1969,5(9):186-187.
- [2] PANKOVE J I, MILLER E A, BERKEYHEISER J E. GaN yellow-light emitting diodes [J]. *J. Lumin.*, 1973,6(1):54-60.
- [3] NAKAMURA S, MUKAI T, SENOH M. Candela-class high-brightness InGaN/AlGaIn double-heterostructure blue-light-emitting diodes [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1994,64(13):1687-1689.
- [4] LEIST J R. The blue laser diode: GaN based light emitters and lasers, by Shuji Nakamura and Gerhard Fasol [J]. *Opt. Photonics News*, 1997,8(12):53.
- [5] KRAMES M R, SHCHEKIN O B, MUELLER-MACH R, et al.. Status and future of high-power light-emitting diodes for solid-state lighting [J]. *J. Disp. Technol.*, 2007,3(2):160-175.
- [6] 唐靓,叶慧琪,肖东. 溶胶-凝胶法制备 YAG: Ce, Yb 纳米荧光粉及其发光性质研究 [J]. *发光学报*, 2018,39(8):1051-1058.
- TANG L, YE H Q, XIAO D. YAG: Ce, Yb nano-phosphor synthesized by sol-gel method and its luminescence properties [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2018,39(8):1051-1058. (in Chinese)
- [7] SCHUBERT E F, KIM J K. Solid-state light sources getting smart [J]. *Science*, 2005,308(5726):1274-1278.
- [8] LEE M J, PARK S H, SONG Y H, et al.. Fabrication of phosphor ceramic plate using green-emitting $Lu_3Al_5O_{12}: Ce^{3+}$ phosphor for high power LEDs [J]. *Mater. Lett.*, 2015,161:708-711.
- [9] 沈雪华,陈焕庭,陈赐海,等. 白光 LED 光谱特性及司辰节律因子 [J]. *发光学报*, 2019,40(12):1514-1522.
- SHEN X H, CHEN H T, CHEN C H, et al.. Spectral characteristics and circadian action factor of white LEDs [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2019,40(12):1514-1522. (in Chinese)
- [10] 李嘉祥,潘拴,刘军林,等. 低色温无荧光粉 LED 光源的可靠性研究 [J]. *发光学报*, 2020,41(3):323-330.
- LI J X, PAN S, LIU J L, et al.. Reliability of low color temperature phosphor-free LED light source [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2020,41(3):323-330. (in Chinese)
- [11] 孟猛,祁强,丁栋舟,等. 新型闪烁晶体 $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}: Ce^{3+}$ 的研究进展 [J]. *人工晶体学报*, 2019,48(8):1386-1394.
- MENG M, QI Q, DING D Z, et al.. Research progress on novel scintillation crystal $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}: Ce^{3+}$ [J]. *J. Synth. Cryst.*, 2019,48(8):1386-1394. (in Chinese)
- [12] 徐兰兰,孙丛婷,薛冬峰. 稀土闪烁晶体研究进展 [J]. *中国科学:技术科学*, 2016,46(7):657-673.
- XU L L, SUN C T, XUE D F. Recent advances in rare earth scintillation crystals [J]. *Chin. Sci. Technol. Sci.*, 2016,46(7):657-673. (in Chinese)
- [13] 张焯,陈先强,秦海明,等. 共沉淀法制备 Ce 掺杂的 $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}$ 粉体 [J]. *无机材料学报*, 2016,31(10):1151-1155.
- ZHANG Y, CHEN X Q, QIN H M, et al.. Fabrication of Ce-doped $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}$ powders using co-precipitation method [J]. *J. Inorg. Mater.*, 2016,31(10):1151-1155. (in Chinese)
- [14] KANG J G, KIM M K, KIM K B. Preparation and luminescence characterization of GGAG: Ce^{3+}, B^{3+} for a white light-emitting diode [J]. *Mater. Res. Bull.*, 2008,43(8-9):1982-1988.
- [15] ZHANG J Y, LUO Z H, JIANG H C, et al.. A novel banded structure ceramic phosphor for high-power white LEDs [J].

Chem. Commun., 2017, 53(50):6772-6775.

- [16] KITAURA M, SATO A, KAMADA K, *et al.*. Phosphorescence of Ce-doped $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}$ crystals studied using luminescence spectroscopy [J]. *J. Appl. Phys.*, 2014, 115(8):083517.
- [17] WEI Q H, ZHUANG J D, LIU G H, *et al.*. Preparation and luminescence properties of $SiO_2/Lu_2Si_2O_7:Ce$ composite starting from mesopore template [J]. *RSC Adv.*, 2014, 4(64):33819-33825.
- [18] FELLER R K, PURDY G M, ORTIZ-ACOSTA D, *et al.*. Large-scale synthesis of $Ce_xLa_{1-x}F_3$ nanocomposite scintillator materials [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2011, 21(15):5716-5722.
- [19] LAWRENCE W G, THACKER S, PALAMAKUMBURA S, *et al.*. Quantum dot-organic polymer composite materials for radiation detection and imaging [J]. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 2012, 59(1):215-221.
- [20] SEN S, TYAGI M, SHARMA K, *et al.*. Organic-inorganic composite films based on $Gd_3Ga_3Al_2O_{12}:Ce$ scintillator nanoparticles for X-ray imaging applications [J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2017, 9(42):37310-37320.
- [21] ZHAO G J, LI T, HE X M, *et al.*. Preparation of gadolinium gallium garnet polycrystalline material by coprecipitation method [J]. *Mater. Lett.*, 2002, 56(6):1098-1102.
- [22] NISHIURA S, TANABE S, FUJIOKA K, *et al.*. Preparation and optical properties of transparent Ce:YAG ceramics for high power white LED [J]. *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, 2009, 1:012031-1-5.
- [23] 冯大建, 丁雨瞳, 刘军, 等. Ce:GAGG 闪烁晶体生长与性能研究 [J]. *压电与声光*, 2016, 38(3):430-432.
FENG D J, DING Y C, LIU J, *et al.*. Study on the growth and scintillation properties of Ce:GAGG crystal [J]. *Piezoelectr. Acoustoopt.*, 2016, 38(3):430-432. (in Chinese)
- [24] LUO Z H, JIANG H C, JIANG J, *et al.*. Microstructure and optical characteristics of Ce: $Gd_3(Ga, Al)_5O_{12}$ ceramic for scintillator application [J]. *Ceram. Int.*, 2015, 41(1):873-876.
- [25] ZHONG J, CHEN D Q, ZHOU Y, *et al.*. Stable and chromaticity-tunable phosphor-in-glass inorganic color converter for high-power warm white light-emitting diode [J]. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2016, 36(7):1705-1713.
- [26] YANG C, LIANG X J, DI X X, *et al.*. Facile fabrication and luminescence characteristics of Ce:YAG phosphor glass thick films coated on a glass substrate for white LEDs [J]. *Ceram. Int.*, 2016, 42(13):14526-14532.
- [27] DI X X, HE X L, JIANG J T, *et al.*. Facile fabrication of Eu^{3+} activated YAG: Ce^{3+} glass ceramics exhibiting high thermal stability and tunable luminescence for warm white LEDs [J]. *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, 2017, 28(12):8611-8620.



张伟杰(1993-),男,江苏淮安人,硕士研究生,2016年于南通大学获得学士学位,主要从事GGAG:Ce复合材料的制备及发光性能的研究。

E-mail: 1216248705@qq.com



魏钦华(1985-),男,浙江宁波人,博士,副教授,硕士研究生导师,2014年于中国科学院上海硅酸盐研究所获得博士学位,主要从事闪烁晶体生长和发光材料的研究。

E-mail: weiqinhua1985@163.com