



白光 LED 用新型 YAG: Ce 玻璃陶瓷的制备与发光性能

崔三川, 陈国华, 姚乐琪, 袁昌来

(桂林电子科技大学 材料科学与工程学院, 桂林 541004)

摘要: 以 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 、 SrCO_3 、 Na_2CO_3 、 Li_2CO_3 、 ZnO 、 H_3BO_3 和 Sb_2O_3 为原料, 采用熔融淬冷和后续球磨制备磷酸盐玻璃粉体。将玻璃粉与 YAG: Ce 荧光粉均匀混合, 利用二次熔融制得 YAG:Ce 块体荧光玻璃陶瓷。利用 XRD、SEM、荧光光谱仪等研究玻璃陶瓷的相组成、显微结构和发光性能。结果表明: 荧光粉均匀分布于玻璃基体中并得到很好地保存, 没有发生化学分解反应。激发光谱在 340 nm 和 460 nm 处有两个激发峰。发射光谱在 530 nm 左右有一宽峰, 属于 Ce^{3+} 的 $5d \rightarrow 4f$ 特征跃迁发射。通过对不同熔融温度、不同荧光粉浓度和不同厚度的荧光玻璃陶瓷进行发光性能表征, 发现最佳荧光粉掺杂浓度、最佳熔融温度和最佳样品厚度分别为 8%(质量分数), 900 °C 和 1.5 mm。该玻璃陶瓷封装蓝光芯片所得白光 LED 器件在 540 mA 驱动下的发光效率为 93.4 lm/W, 色坐标为(0.306, 0.331), 色温为 6867 K, 显色指数为 72。研制的玻璃陶瓷是一种可用于白光 LED 的新型荧光材料。

关键词: 白光 LED; 玻璃陶瓷; YAG; 荧光性能; 熔融法

文章编号: 1004-0609(2017)-09-1889-07

中图分类号: TQ174

文献标志码: A

在 20 世纪 90 年代, NAKAMURA 等^[1]采用 MOCVD 成功制备了世界上首个高亮度 InGaN 蓝光发光二极管(light-emitting diode, LED), 使得 LED 形成三基色完备的发光体系。白光 LED 作为 21 世纪的新型固态光源, 具有体积小、节能环保、响应速度快、使用寿命长等优点, 被认为是继白炽灯、荧光灯、气体放电灯之后的“第四代绿色照明光源”^[2-3]。1996 年日本日亚化学公司首次开发出利用环氧树脂将黄色 $\text{Ce}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG:Ce)荧光涂覆于蓝色 LED 芯片上而得到白光, 并迅速实现了白光 LED 的商业化。由于芯片功耗及荧光粉光转换过程中的能量损失会转化为热能, 芯片和荧光粉涂层温度会随之升高, 传统封装材料长期在高温和短波光照射下透过率下降, 产生严重老化现象^[4]。尤其是随着 LED 输出功率的增加, LED 芯片温度大幅上升, 进而导致封装用环氧树脂/硅胶老化泛黄, 最终导致 LED 器件的性能劣化, 如光效损失、色温漂移、寿命减少等问题^[5-6]。

鉴于目前白光 LED 出现的上述问题, 近年来人们开始研发具有高稳定性、长寿命的透明荧光玻璃或荧光玻璃陶瓷等新型无机荧光材料^[3, 7-10]。目前制备荧

光玻璃陶瓷的主要方法是熔融法, 如最早报道 Ce:YAG 荧光玻璃陶瓷的日本电气硝子公司即采用此方法^[11-12]。后来, 国内外学者等人利用此方法也制备出符合白光 LED 性能要求的荧光微晶玻璃^[13-14]。这种方法类似于传统玻璃的高温熔融法, 具有技术简单的优点, 但是使用该方法制备荧光玻璃陶瓷熔融温度高达 1500~1650 °C, 需要较长时间的熔融和热处理, 且量子产率只有 30%。近几年来, 低熔点玻璃与荧光粉混合烧结制备荧光玻璃的方法使得烧结温度大大降低, 并且量子效率也得到提高。但这种低熔点玻璃存在成本高、能耗大或存在含有 Pb 不利于环保等问题, 并且荧光粉在玻璃熔体中可能发生界面反应, 这将降低荧光粉的发光性能^[15-17]。

本文作者首先采用熔融法制备出低熔点磷酸盐玻璃, 然后利用行星球磨制得磷酸盐玻璃粉。将市售 Ce:YAG 荧光粉和自制的磷酸盐玻璃粉混合均匀后在不同温度下二次熔融浇注成型得到荧光玻璃陶瓷, 该方法具有制备工艺简单、熔融温度低和易加工等特点。研究了不同荧光粉浓度、不同熔融温度和不同厚度对玻璃陶瓷样品发光性能的影响。

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51362005); 国家级大学生创新计划项目(10595043)

收稿日期: 2016-07-15; 修订日期: 2016-10-07

通信作者: 陈国华, 教授, 博士; 电话: 0773-2291957; E-mail: chengh@guet.edu.cn

1 实验

1.1 玻璃粉体制备

采用熔融法制备玻璃成分摩尔分数为 45%~50% P_2O_5 , 8%~10% B_2O_3 , 15%~20% ZnO , 8%~12% SrO , 7%~10% Na_2O , 1%~2.0% Li_2O , 0.5%~1% Sb_2O_3 (缩写为 PZS, 下同) 磷酸盐玻璃。以分析纯的 $NH_4H_2PO_4$ 、 ZnO 、 $SrCO_3$ 、 Na_2CO_3 、 Li_2CO_3 、 H_3BO_3 和 Sb_2O_3 (西陇化工, 纯度 $\geq 99.0\%$) 为原料, 按照玻璃组成称取各种原料, 将配好的料以无水酒精为介质, 球磨混合 24 h, 烘干, 将配合料置于刚玉坩埚在电炉中于 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 2 h 熔化呈玻璃液, 将玻璃液倒入冷水中成玻璃渣, 之后球磨成细粉, 经 XRD 分析为典型的非晶态。

1.2 荧光玻璃陶瓷制备

在上述制得的玻璃粉中掺入不同浓度的商用黄色荧光粉 Ce:YAG, 经混合均匀后分别在 $850\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $950\text{ }^\circ\text{C}$ 二次熔融保温 1 h, 然后把熔化好的玻璃液浇注在事先预热到 $400\text{ }^\circ\text{C}$ 左右的模具中成型, 之后把成型的玻璃置于 $400\text{ }^\circ\text{C}$ 的退火炉中退火 5 h 得到荧光玻璃陶瓷。制备的荧光玻璃陶瓷样品的特性如表 1 所列。

表 1 荧光玻璃陶瓷样品的特性

Table 1 Characteristics of fluorescence glass ceramic samples

Sample No.	Melting temperature/ $^\circ\text{C}$	Concentration of Ce: YAG, w/%	Thickness of samples/mm
A82	850	8	1.5
B62	900	6	1.5
B72	900	7	1.5
B81	900	8	2.0
B82	900	8	1.5
B83	900	8	1.0
B92	900	9	1.5
C82	950	8	1.5

1.3 性能表征

采用德国 Brucker 公司生产 D8-ADVANCE 型号多晶 X 射线衍射仪分析物相组成。采用荷兰 Fei 公司生产 QUANTA FEG 450 型场发射扫描电子显微镜观察样品微观形貌。采用英国爱丁堡 SF5 型荧光光谱仪测试荧光玻璃的光致发光光谱, 测试发射光谱使用波长扫描模式, 固定激发波长, 扫描其发射范围; 测试激发光谱时固定发射波长, 扫描其激发范围。最后将

荧光玻璃陶瓷与蓝光 LED 芯片封装成白光 LED 样品, 使用杭州伏达光电 VOLNIC-3000 光色电综合测试系统测试光电参数。样品的所有测试均在室温下进行。

2 结果与讨论

2.1 物相结构分析

图 1 所示为不同制备条件下荧光玻璃陶瓷样品的实物图、扫描电镜照片和 XRD 谱。由图 1(a)可知, 样

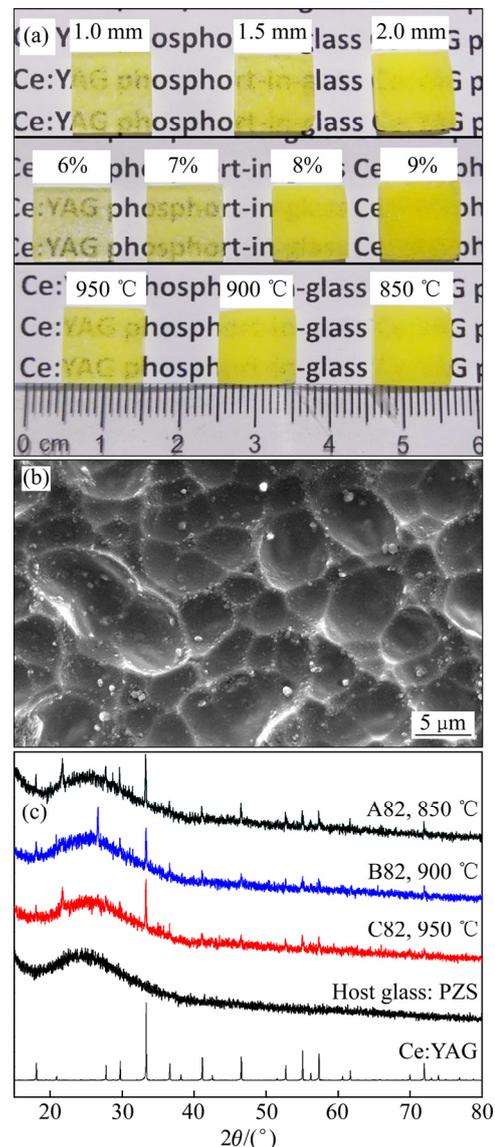


图 1 不同荧光玻璃陶瓷样品照片、荧光玻璃陶瓷样品 B82 的 SEM 像和磷酸盐玻璃和荧光玻璃陶瓷的 XRD 谱

Fig. 1 Pictures of as-prepared fluorescence glass ceramic samples (a), SEM images of fluorescence glass ceramic sample B82 (b) and XRD patterns of phosphate glass and glass ceramic samples (c)

品厚度、掺杂荧光粉浓度和二次熔融温度对玻璃陶瓷的透明度有直接影响。随着厚度、荧光粉浓度的增加或熔融温度的降低, 样品的透明度降低。在保持一定透明度的前提下, 适当增加荧光粉浓度有利于提高发光性能。图 1(b)给出了荧光粉浓度为 8%(质量分数)的荧光玻璃陶瓷的 SEM 像。从图中可以看出, 荧光粉颗粒在玻璃基质中分布较为均匀, 颗粒平均大小为 0.3~0.8 μm , 与初始粒径基本一致。这说明二次熔融过程中荧光粉基本没有被破坏, 而是分布在玻璃基质中得到很好地保存。图 1(c)所示为磷酸盐玻璃、不同温度下的荧光玻璃陶瓷和 Ce: YAG 荧光粉的 XRD 谱。由图 1(c)可见, 磷酸盐玻璃(Host Glass: PZS)样品的衍射峰呈典型的玻璃弥散峰。所有荧光玻璃陶瓷样品在 25° 处存在一个宽的衍射峰, 这是典型的 Si—O—Si 非晶衍射峰。除此之外, 荧光玻璃陶瓷样品的衍射峰均来自 Ce:YAG 荧光粉的特征峰, 这表明虽然玻璃陶瓷样品主体仍为玻璃相, 但是二次熔融并没有破坏

Ce:YAG 晶体结构, 荧光粉被完好地固化在玻璃基体中, 这与图 1(b)的照片相吻合。随着烧结温度的升高, 荧光粉特征峰在基础玻璃中并没有发生太大变化, 此温度不会使荧光粉失效, 说明该基质玻璃可以对荧光粉起到保护作用且不会影响荧光粉的结构。

2.2 发光性能分析

为了考察玻璃陶瓷的荧光性能, 实验分别研究了典型玻璃陶瓷样品 B62 的激发和发射光谱、不同温度制备的荧光玻璃陶瓷的发射光谱、掺杂不同浓度荧光粉的荧光玻璃陶瓷的发射光谱和不同厚度荧光玻璃陶瓷的发射光谱, 结果如图 2 所示。从图 2(a)中可以看出, 样品分别在 340 和 460 nm 处存在宽的激发峰, 其中 460 nm 处的宽峰是由 440 和 470 nm 的两个激发峰组合而成。这两个较宽激发峰是由于电荷从 Ce^{3+} 的 4f 基态到 5d 激发态的跃迁引起的。340 和 460 nm 的激发峰对应于 $^2F_{5/2}$ 至 5D 激发态的最低和第二低的能级

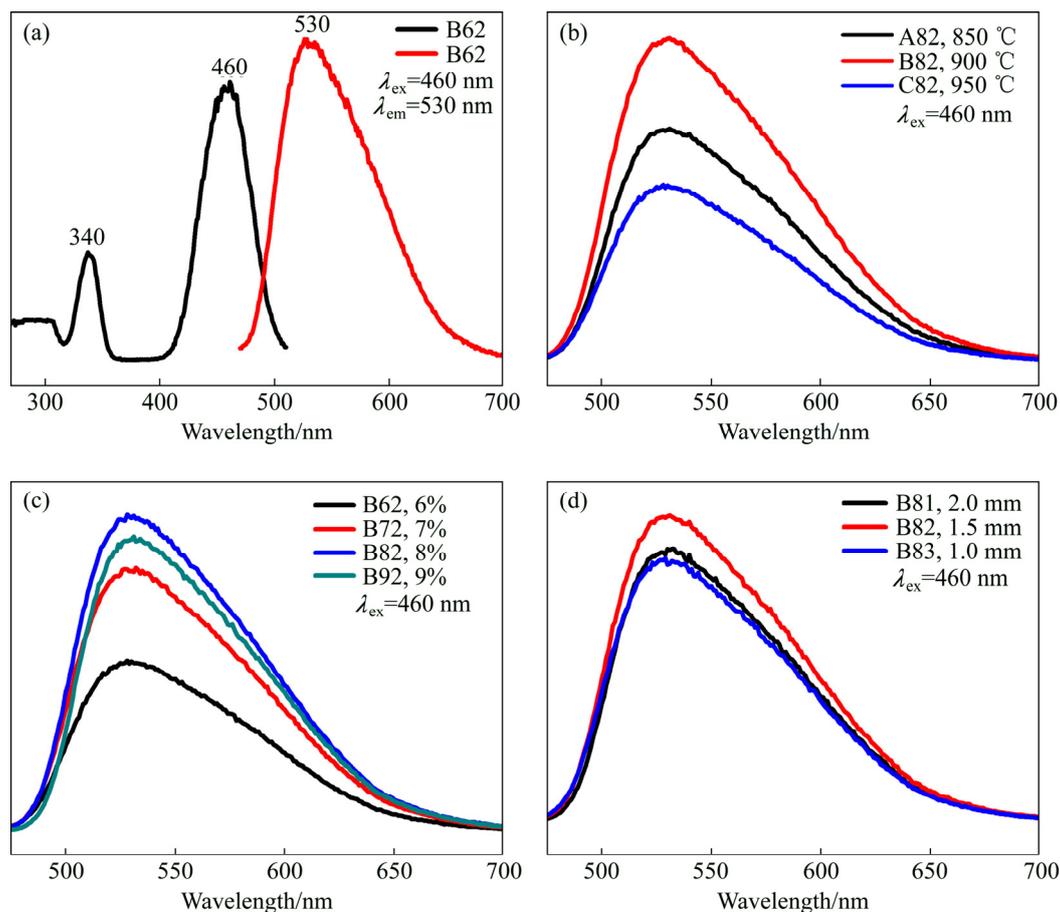


图 2 典型玻璃陶瓷样品 B62 的激发和发射光谱、不同熔制温度制得的玻璃陶瓷的发射光谱、不同 Ce:YAG 浓度玻璃陶瓷的发射光谱和不同厚度玻璃陶瓷的发射光谱

Fig. 2 Excitation and emission spectra of typical glass ceramic sample B62 (a), emission spectra of glass ceramics prepared at different melting temperatures (b), emission spectra of glass ceramics with various concentration of Ce:YAG powder (c) and emission spectra of glass ceramics with different thickness (d)

跃迁^[18-19]。样品发射光谱为可见光区内的宽谱,范围为500~650 nm,最强发射峰位于530 nm,属于Ce³⁺的5d→4f特征跃迁发射^[20]。高斯拟合显示,该发光峰具有双重带特征,分别对应于Ce³⁺离子5d最低能量激发态向基态4f¹的两个子能级²F_{7/2}和²F_{5/2}的跃迁。而5d能级受外场的影响较大,造成激发和发射光谱均表现为宽峰^[21-23]。由图2(b)可知,900℃时玻璃陶瓷样品的发射光谱强度最高。根据玻璃工艺原理可知,玻璃的黏度随温度的升高而降低,而荧光粉的活性随着温度增加而降低。850℃时虽然荧光粉的活性最大(几乎不和玻璃基体发生反应),但此时玻璃的黏度过大而不能将荧光粉完全包裹在玻璃基质中,这会导致部分气孔分布不均匀而导致发光强度不高。950℃时玻璃的黏度最小,但此温度对荧光粉的活性影响较大导致荧光粉部分失效,从而降低玻璃陶瓷样品的发光强度。900℃时玻璃的黏度适中,可很好包裹荧光粉并排除大量气泡,样品的透明度好。同时,荧光粉的活性受温度的影响并不大。因此,900℃制得的玻璃陶瓷样品的发光强度最高。图2(c)所示为掺杂不同

浓度荧光粉的玻璃陶瓷样品在460 nm激发下的发射光谱。从图2(c)中可以看出,随着荧光粉浓度的增加,玻璃陶瓷样品的发光强度呈先增后降的变化趋势,在荧光粉浓度为8%达到最高。这是因为发光强度主要受荧光粉的浓度和分布状况影响,荧光粉浓度太低会使其在玻璃基体中分布不均匀,从而导致发光强度不高。荧光粉浓度过高会导致样品透明度降低,从而影响样品对激发光的吸收,最终恶化发光性能。图2(d)所示为不同厚度的玻璃陶瓷样品在460 nm激发下的发射光谱。由图2(d)可见,1.5 mm厚度样品的发光强度最高。原因可能是厚度过薄,荧光粉的量相对减少而降低发光强度。厚度过厚会影响玻璃陶瓷的透明度,从而影响样品对激发光的吸收,结果降低了发光强度。可见,掺杂荧光粉浓度存在一个最佳值。

2.3 白光LED器件发光性能研究

实验采用商用10W蓝光LED集成芯片与荧光玻璃陶瓷进行封装,封装后发光器件如图3(a)所示。具体过程为:将10 mm×10 mm的玻璃陶瓷四周直接覆

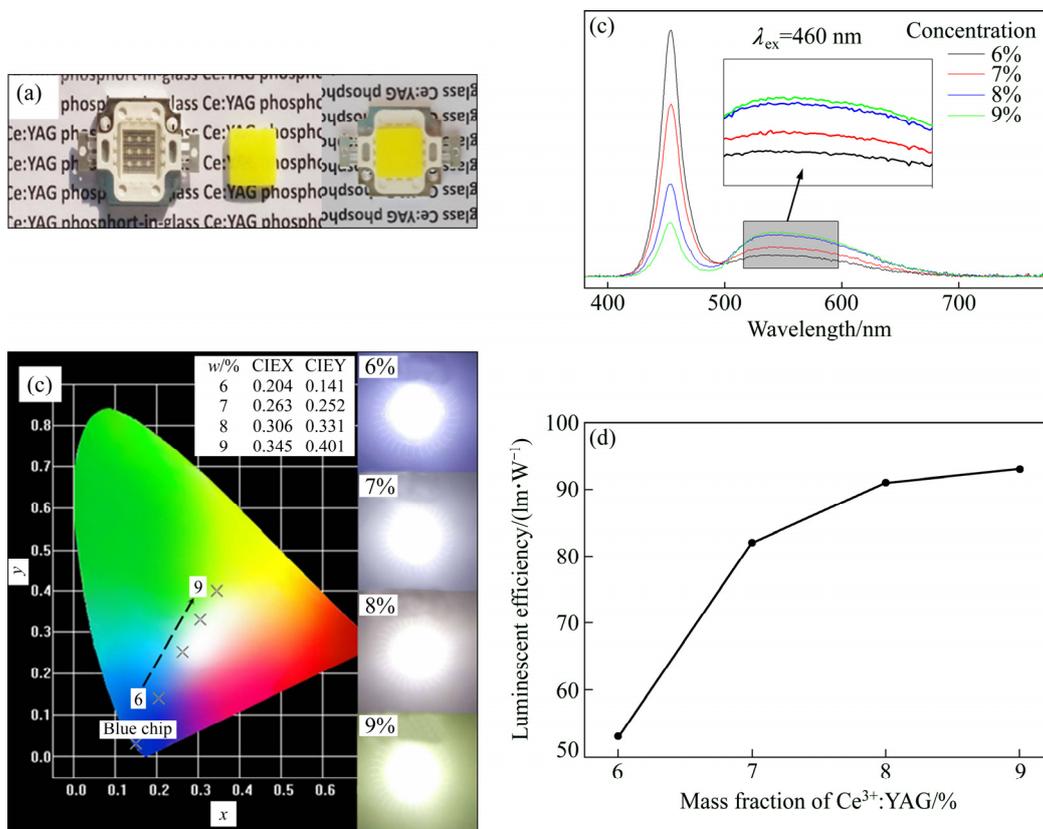


图3 蓝光LED芯片、玻璃陶瓷样品和封装的白光LED器件、不同荧光粉浓度白光LED器件的发射光谱、LED器件的色坐标和发光照片和发光效率

Fig. 3 Blue-chip client, glass ceramic specimen and packaged white LED module (a), emission spectra of white LED modules with various concentration of Ce³⁺:YAG (b), chromaticity color coordinates of LED modules and illuminant pictures (c) and their luminescent efficiency(d)

盖在上述 LED 芯片上面并利用导热胶粘接封装, 制成一个白光 LED 器件进行性能测试。图 3(b)所示为掺杂不同荧光粉浓度的样品与蓝光芯片封装的 LED 发光器件在 9.5V, 540 mA 电源驱动下蓝光和黄光混合得到的光谱。不同荧光粉浓度白光 LED 器件的色坐标如图 3(c)所示。由图 3(c)可知, 随着荧光粉浓度的增加, LED 器件发出的光从冷白光区域移向暖白光区域, 同时发光效率也逐渐增大, 如图 3(d)所示。当荧光粉浓度为 8%时, LED 发光器件的色坐标(x, y)为(0.306, 0.331), 接近于标准白光的色坐标(0.333, 0.333), 发光效率为 93.4 lm/W, 色温为 6867K, 显色指数为 72。表明本实验采用二次熔融制备的荧光玻璃陶瓷能够与蓝光 LED 芯片很好地匹配, 形成白光输出, 有望用于新一代白光 LED 器件。

3 结论

1) 采用熔融淬冷和后续球磨工艺制得新型低熔点磷酸盐玻璃粉体。将制得的玻璃粉与商用 YAG:Ce 荧光粉均匀混合, 利用二次熔融成功制备出 YAG:Ce 块体玻璃陶瓷。

2) XRD 和 SEM 结果表明: 合适的熔融温度能使荧光粉均匀分布于玻璃基体中, 并得到很好地保护而不发生失效。

3) 荧光玻璃陶瓷样品的激发和发射光谱表明: 在 340 nm 和 460 nm 附近有两个激发峰。发射光谱在 530 nm 左右有一宽峰, 属于 Ce^{3+} 的 $5d \rightarrow 4f$ 特征跃迁发射。

4) 荧光粉浓度为 8%的玻璃陶瓷混合料经 900 °C 二次熔融制得厚度为 1.5 mm 荧光玻璃陶瓷的发光性能最优。该玻璃陶瓷材料能与蓝光 LED 芯片匹配, 制备高稳定性和高品质的白光 LED, 有望用于白光 LED 领域。

REFERENCES

[1] NAKAMURA S J, MUKAI T. High-brightness InGaN/AlGaIn double-heterostructure blue-green-light-emitting diodes[J]. *Journal of Applied Physics*, 1994, 76(12): 8189–8191.

[2] SCHUBERT E F, KIM J K. Solid-state light sources getting smart[J]. *Science*, 2005, 308(5726): 1274–1278.

[3] 王家鑫, 陈国华, 李旭琼, 何志毅, 袁昌来, 杨会娟, 杨云. Ce/Tb/Mn 共掺杂 ZnO-SrO-P₂O₅ 玻璃陶瓷的制备与白光发射调控[J]. *中国有色金属学报*, 2014, 24(6): 1538–1543.

WANG Jia-xin, CHEN Guo-hua, LI Xu-qiong, HE Zhi-yi, YUAN Chang-lai, YANG Hui-juan, YANG Yun. Preparation and

white light emission regulation of Ce/Tb/Mn co-doped ZnO-SrO-P₂O₅ glass-ceramics[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2014, 24(6): 1538–1543.

[4] STERANKA F M, BHAT J, COLLINS D, COOK L, CRAFT M G, FLETCHER R, GARDNER N, GRILLOT P, GOETZ W, KEUPER M, KHARE R, KIM A, KRAMES M, HARBERS G, LUDOWISE M, MARTIN P S, MISRA M, MUELLER G, MUELLER-MACH R, RUDAZ S, SHEN Y C, STEIGERWALD D, STOCKMAN S, SUBRAMANYA S, TROTTIER T, WIERER J J. High power LEDs—Technology status and market applications[J]. *Phys Status Solidi A*, 2002, 194(2): 380–388.

[5] 吴海彬, 王昌铃. 白光 LED 封装材料对其光衰影响的实验研究[J]. *光学学报*, 2005, 25(8): 1091–1094.

WU Hai-bin, WANG Chang-ling. Experimental research on influence of packing materials of white LED on its luminous decay[J]. *Acta Optic Sinica*, 2005, 25(8): 1091–1094.

[6] 钱可元, 胡飞, 吴慧颖, 罗毅. 大功率白光 LED 封装技术的研究[J]. *半导体光电*, 2005, 26(2): 118–120.

QIAN Ke-yuan, HU Fei, WU Hui-ying, LUO Yi. Packaging technique of high-power white LED[J]. *Semiconductor Optoelectronics*, 2005, 26(2): 118–120.

[7] WANG J, TSAI C C, CHENG W C, CHEN M H, CHUNG C H, CHENG W H. High thermal stability of phosphor-converted white light-emitting diodes employing Ce:YAG-doped glass[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2011, 17(3): 741–746.

[8] LEE Y K, LEE J S, HEO J, IM W B, CHUNG W J. Phosphor in glasses with Pb-free silicate glass powders as robust color-converting materials for white LED applications[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(15): 3276–3278.

[9] 朱学绘, 范广涵, 王海丽, 沈德忠, 章勇. 新型 Ce:YAG 陶瓷荧光体封装白光 LED 的性能[J]. *功能材料与器件学报*, 2010, 16(4): 389–393.

ZHU Xue-hui, FAN Guang-han, WANG Hai-li, SHENG De-zhong, ZHANG Yong. White LED packaged by novel Ce:YAG ceramic phosphor[J]. *Journal of Functional Materials and Devices*, 2010, 16(4): 389–393.

[10] 黄海宇, 向卫东, 张志敏, 钟家松, 金怀东, 董永军, 梁晓娟. YAG:Ce, Mn 微晶玻璃的制备及光谱性能研究[J]. *中国稀土学报*, 2012, 30(6): 726–730.

HUANG Hai-yu, XIANG Wei-dong, ZHANG Zhi-min, ZHONG Jia-song, JIN Huai-dong, DONG Yong-jun, LIANG Xiao-jun. Preparation and luminescence properties of cerium, manganese co-doping YAG glass ceramics[J]. *Journal of the Chinese Society of Rare Earths*, 2012, 30(6): 726–731.

[11] FUJITA S, YOSHIHARA S, SAKAMOTO A, YAMAMOTO S, TANABE S. YAG glass-ceramic phosphor for white LED (I): background and development. *Proceedings of the SPIE-The International Society for Optical Engineering*, 2005, 5941:

- 594111-1-7.
- [12] FUJITA S, SAKAMOTO A, TANABE S. Luminescence characteristics of YAG glass-ceramic phosphor for white LED[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2008, 14(5): 1387-1391.
- [13] 贺海平, 邓宏, 陈金菊. 白光LED封装用Ce:YAG荧光微晶玻璃的研究[J]. 电子元件与材料, 2010, 29(5): 60-63.
HE Hai-ping, DENG Hong, CHEN Jin-ju. Research of Ce:YAG fluorescent glass ceramic for white LED package[J]. Electronic Components and Materials, 2010, 29(5): 60-63.
- [14] JIANG Qing-yun, LI Chen-xia, YE Ren-guang, CHEN Hong, HUA You-jie, DENG De-gang, ZHAO Shi-long, XU Shi-qing. Luminescence and energy transfer of Ce^{3+}/Sm^{3+} Co-doped glass and glass ceramics containing Zn_2SiO_4 nanocrystals for white LEDs[J]. Chinese Journal of Luminescence, 2012, 33(4): 371-376.
- [15] TSAI C C, CHENG W C, CHANG J K, CHEN L Y; CHEN J H; HSUY C, CHENG W H. Ultra-high thermolstable glass phosphor layer for phosphor-converted white light-emitting diodes[J]. Journal of Display Technology, 2013, 9(6): 427-432.
- [16] ZHANG R, LIN H, YU Y L, CHEN D Q, XU J, WANG Y S. A new-generation color converter for high-power white LED: Transparent Ce^{3+} :YAG phosphor-in-glass[J]. Laser & Photonics Reviews, 2014, 8(1): 158-164.
- [17] 宋国华, 缪建文, 徐淑武, 纪宪明. YAG:Ce³⁺ +玻璃陶瓷白光LED的发光特性[J]. 光电子激光, 2010, 21(12): 1875-1789.
SONG Guo-hua, MIAO Jian-wen, XU Shu-wu, JI Xiang-ming. Photoluminescence properties of the Ce^{3+} -doped yttrium aluminum garnet glass-ceramic white LED[J]. Journal of Optoelectronics Laser, 2010, 21(12): 1875-1789.
- [18] 张凯, 刘河洲, 作亚婷, 胡文斌. YAG:Ce 纳米荧光粉发光的温度依赖特性[J]. 无机材料学报, 2008, 23(5): 1045-1048.
ZHANG Kai, LIU He-zhou, WU Ya-ting, HU Wen-bin. Temperature dependence of luminescence and decay time of YAG: Ce nanophosphor[J]. Journal of Inorganic Materials, 2008, 23(5): 1045-1048.
- [19] 马林, 胡建国, 万国江, 胡学芳, 闫世润, 虞力刚, 王惠琴, 徐燕. YAG:Ce 发光材料合成的助熔剂研究[J]. 发光学报, 2006, 27(3): 348-352.
MA Lin, HU Jian-guo, WAN Guo-jiang, HU Xue-fang, YAN Shi-run, YU Li-gang, WANG Hui-qin, XU Yan. Effect of flux on YAG:Ce phosphors prepared by solid-state reactions[J]. Chinese Journal of Luminescence, 2006, 27(3): 348-352.
- [20] 李友凤, 刘国清, 漆斌, 周虎, 姜绮梦. EDTA 络合溶胶-凝胶法合成 YAG:Ce 黄色荧光粉及其性能[J]. 中国有色金属学报, 2014, 24(4): 1001-1007.
LI You-feng, LIU Guo-qing, QI Bin, ZHOU Hu, JIANG Qi-meng. YAG:Ce yellow phosphor synthesized by sol-gel method combining EDTA complexing agent and its properties[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2014, 24(4): 1001-1007.
- [21] 杨新波, 石云, 李红军, 毕群玉, 苏良碧, 刘茜, 潘裕柏, 徐军. Ce:YAG 晶体和透明陶瓷的光学和闪烁性能[J]. 物理学报, 2009, 58(11): 8050-8054.
YANG Xin-bo, SHI Yun, LI Hong-jun, BI Qun-yu, SU Liang-bi, LIU Qian, PAN Yu-bo, XU Jun. Optical and scintillation properties of Ce:YAG crystal and transparent ceramics[J]. Acta Physica Sinica, 2009, 58(11): 8050-8054.
- [22] 李永绣, 闵宇霖, 周雪珍, 游效曾. 有机-无机杂化凝胶法合成 YAG:Ce³⁺ 荧光粉的包膜及其稳定性[J]. 无机化学学报, 2003, 19(11): 1169-1174.
LI Yong-xiu, MIN Yu-lin, ZHOU Xue-zhen, YOU Xiao-zeng. Coating and stability of YAG:Ce³⁺ phosphor synthesized using inorganic-organic hybrid gel method[J]. Journal of Inorganic Chemistry, 2003, 19(11): 1169-1174.
- [23] 张延, 刘升, 许虹杰, 王连军, 江莞. LED 用荧光玻璃的制备及性能研究[J]. 无机材料学报, 2015, 30(6): 588-592.
ZHANG Yan, LIU Sheng, XU Hong-jie, WANG Lian-jun, JIANG Wan. Preparation and Performance of Ce:YAG Phosphor-in-glass[J]. Journal of Inorganic Materials, 2015, 30(6): 588-592.

Preparation and luminescent properties of new Ce:YAG glass ceramics for white LED applications

CUI San-chuan, CHEN Guo-hua, YAO Le-qi, YUAN Chang-lai

(School of Material Science and Engineering, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China)

Abstract: The phosphate glass powders were synthesized by melting-quenching and subsequent ball milling method using $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$, SrCO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 , ZnO , H_3BO_3 and Sb_2O_3 as raw materials. After mixing the YAG:Ce phosphor with glass powder, bulk YAG:Ce fluorescence glass ceramics were obtained by melting again. The phase composition, microstructure and photoluminescence properties of glass ceramics were investigated by XRD, SEM and fluorescence spectrophotometer. The results show that the Ce:YAG phosphor particles are uniformly distributed and well preserved in glass matrix without any decomposition reaction. The excitation spectra have two excitation bands at 340 nm and 460 nm. The broad emission peaks at about 530 nm can be attributed to $5d \rightarrow 4f$ transition of Ce^{3+} ion. The photoluminescence properties of glass ceramics with different melting temperatures, various Ce:YAG concentration and different thickness were characterized, indicating that the optimal Ce:YAG phosphor concentration, melting temperature and thickness is 8% (mass fraction), 900 °C and 1.5 mm, respectively. Under driving current of 540 mA, the luminous efficiency of the white LED packaged by the as-prepared glass ceramic and blue LED chip is 93.4 lm/W, and its color coordinate (CIE), color temperature (CCT) and color rendering index (CRI) are (0.306, 0.331), 6867 K and 72, respectively. These results show that the as-prepared glass ceramic is a new fluorescent material for white LEDs.

Key words: white LED; glass ceramic; YAG; fluorescence property; melting method

Foundation item: Project (51362005) supported by National Natural Science Foundation of China; Project (10595043) supported by National Undergraduate Innovation Program, China

Received date: 2016-07-15; **Accepted date:** 2016-10-07

Corresponding author: CHEN Guo-hua; Tel: +86-773-2291957; E-mail: chengh@guet.edu.cn

(编辑 王 超)