

文章编号: 1000-324X(2018)10-1119-05

DOI: 10.15541/jim20170616

## Ce:YAG 荧光陶瓷掺杂 Gd 对白光 LED 发光性能的影响

邵秀晨<sup>1,2,3</sup>, 周圣明<sup>1</sup>, 唐燕如<sup>1,2</sup>, 易学专<sup>1</sup>, 郝德明<sup>1,2</sup>, 陈杰<sup>1,2,3</sup>

(1. 中国科学院 上海光学精密机械研究所 强激光材料重点实验室, 上海 201800; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 上海科技大学, 上海 201200)

**摘要:** Ce: YAG 荧光陶瓷具有突出的导热性及化学稳定性, 相比有机硅胶封装法在高功率白光 LED 的应用上具有更广阔的应用前景。本研究采用真空固相烧结法制备了不同 Gd 掺杂浓度的  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  样品, 通过 XRD, SEM 及荧光光谱等表征手段, 研究了 Gd 掺杂对 Ce:YAG 荧光陶瓷的晶体结构及其用于白光 LED 时对发光性能的影响。实验表明, 随着 Gd 掺杂浓度的提高,  $\text{Gd}^{3+}$  取代  $\text{Y}^{3+}$  的位置进入晶格, 使得样品的晶格常数增加。 $\text{Gd}^{3+}$  还影响了  $\text{Ce}^{3+}$  对蓝光的吸收, 同时  $\text{Ce}^{3+}$  将蓝光转换成黄光的效率也下降, 导致光效从 81.45 lm/W 降低至 63.70 lm/W。Gd 的掺杂使  $\text{Ce}^{3+}$  的光致发光峰位从 534 nm 向 564 nm 红移, 显色指数从 61.3 提升至 70.2。Gd 的掺杂虽然降低了发光效率, 但显著提高了  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  样品的显色指数, 使得黄色 YAG 荧光陶瓷应用于白光 LED 的性能得到了提高。

**关键词:** Ce:YAG; 荧光陶瓷; 白光 LED; 显色指数

中图分类号: TQ174 文献标识码: A

## Luminescence Characteristics of Ce: YAG Ceramic Phosphors with $\text{Gd}^{3+}$ Doping for White Light-emitting Diodes

SHAO Xiu-Chen<sup>1,2,3</sup>, ZHOU Sheng-Ming<sup>1</sup>, TANG Yan-Ru<sup>1,2</sup>, YI Xue-Zhuan<sup>1</sup>,  
HAO De-Ming<sup>1,2</sup>, CHEN Jie<sup>1,2,3</sup>

(1. Key laboratory of Materials for High Power Laser, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China)

**Abstract:** Ce:YAG ceramic phosphor has outstanding thermal conductivity and chemical stability for application in white light-emitting diodes (WLEDs), thus has a broader application than organic packaging in high-power WLEDs.  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  ceramic phosphors of varying  $\text{Gd}^{3+}$  concentrations were fabricated through solid-state reactive sintering method. Through X-ray diffraction, scanning electron microscopy, and fluorescence spectroscopy, the crystal structures, influence of the Gd concentration on fluorescence spectra of Ce:YAG, and luminescence properties of WLEDs with  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  ceramic phosphors were investigated. As Gd content increased, the  $\text{Gd}^{3+}$  replaced the lattice position of  $\text{Y}^{3+}$  into the lattice. The absorption of blue light and relative photoluminescence (PL) intensity of the  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  ceramic phosphors decreased as Gd content increased, leading to a reduction in the luminous efficacy from 81.451 m/W to 63.701 m/W. Moreover, the PL emission bands of  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  exhibited redshift from 534 nm toward 564 nm and resulted in increase of the color rendering index from 61.3 to 70.2. Although doping of Gd

收稿日期: 2017-12-28; 收到修改稿日期: 2018-03-26

基金项目: 国家自然科学基金(61475172); 中国科学院国际合作局重点项目(181231KYSB20160005)

National Natural Science Foundation of China (61475172); External Cooperation Program of Chinese Academy of Sciences (181231KYSB20160005)

作者简介: 邵秀晨(1991-), 男, 硕士研究生. E-mail: shaoxch@shanghaitech.edu.cn

通讯作者: 周圣明, 研究员. E-mail: zhousm@siom.ac.cn

decreases the luminous efficacy, the color rendering index of the  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  sample is significantly increased, and the performance of the yellow YAG ceramic phosphor applied to the white LED is improved.

**Key words:** Ce: YAG; ceramic phosphor; WLED; CRI

白光 LED 是一种新型固体光源, 随着 Ce:YAG 荧光转换材料的研究<sup>[1-4]</sup>, 不断扩展其在照明领域的应用范围<sup>[5]</sup>。目前商用白光 LED 使用有机硅胶, 将 Ce:YAG 黄色荧光粉封装在蓝光 LED 表面制成白光器件<sup>[6]</sup>。使用有机材料封装会导致 LED 发光效率衰退, 稳定性较差, 发光光谱移动以及用于高功率照明时使用寿命较短等问题。Ce:YAG 黄色荧光陶瓷不仅能够改善 LED 在高功率照明场景下的稳定性及寿命等问题, 且制备过程比使用有机硅胶更加环保。然而基于 Ce:YAG 荧光转换材料的白光 LED 的发光光谱中红光成分较少<sup>[7-10]</sup>, 显色指数较低, 对白光质量影响较大。为了提升照明显色指数, 一般可以共掺杂红光发射离子, 如  $\text{Cr}^{3+}$  和  $\text{Pr}^{3+}$ , 它们不仅可以进行可见光转换, 而且这两种离子转换后的发射波长能够弥补  $\text{Ce}^{3+}$  的激发光谱红光较少的问题<sup>[11-13]</sup>, 但是这两种离子进行可见光转换的过程会损失较多的能量, 从而较大幅度降低白光 LED 的发光效率。另外, 通过引入共掺杂离子可以影响  $\text{Ce}^{3+}$  使其激发光谱红移, 从而补充红光发射<sup>[14-16]</sup>。 $\text{Gd}^{3+}$  和  $\text{Tb}^{3+}$  在 Ce:YAG 体系中能够使  $\text{Ce}^{3+}$  的激发光谱发生红移, 从而提升显色指数<sup>[17-18]</sup>。

本工作通过取代不同比例 Y 元素来掺入 Gd 元素, 制备  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  陶瓷荧光片。对样品的物相成分、晶粒尺寸以及不同 Gd 掺杂浓度对荧光陶瓷片的白光发光性能的影响做了研究。实验还测量了  $(\text{Gd}, \text{Y})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  样品与蓝光 LED 结合后的光效与显色指数。

## 1 实验方法

### 1.1 样品制备

根据化学式  $(\text{Ce}_{0.001}\text{Gd}_x\text{Y}_{0.999-x})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  来配制原料, 并通过真空间相烧结法制备样品。表 1 列出了实验所设计的不同 Gd 掺杂浓度。

设计掺杂浓度时, 为了避免过多掺入 Ce 元素导致  $\text{Ce}^{3+}$  的浓度猝灭效应, 选择掺入 Ce 的比例为

表 1 Ce:YAG 荧光陶瓷掺杂 Gd 的百分比

Table 1 Percentage of Gd concentration in Ce:Gd:YAG

Sample	D1	D2	D3	D4
$x$	5at%	10at%	15at%	20at%

0.1at%。将纯度为 99.999% 的  $\text{Y}_2\text{O}_3$  和  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 以及纯度为 99.99% 的  $\text{CeO}_2$  和  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  按照化学计量比配好, 加入 0.1wt% 的  $\text{MgO}$  和 0.4wt% 的正硅酸四乙酯(TEOS)作为烧结助剂, 再加入 0.1wt% 的 PEG 作为分散剂。将配好的原料和酒精及玛瑙珠混合后放入行星球磨机内球磨 12 h, 充分混合。再放入 70°C 的烘箱中将酒精烘干, 获得干料。经过 150 目的筛网过筛造粒后, 先用 10 MPa 的单轴压机压成块体, 再放入 210 MPa 的冷等静压机中进一步成型。得到的块体放入马弗炉中, 升温到 600°C 预烧 3 h 除去块体内的有机成分。再将样品转移到真空炉中, 抽真空至  $10^{-3}$  Pa 以下, 升温到 1700°C 并保持 10 h, 最终得到烧结成品。使用内圆切割机切出一系列不同厚度的样品并作抛光处理, 用于测试。

### 1.2 表征

使用 X 射线衍射仪(日本理光 Ultima IV 型)来表征样品的物相组成, 采用  $\text{CuK}\alpha$  作为射线源, 入射角  $2\theta=10^\circ\sim90^\circ$ , 步进角度 0.02°, 电压电流为 40 kV, 40 mA。采用扫描电镜(日本日立 S-4800 型 FESEM)观察样品断裂表面形貌, 并利用线性截距法计算样品的晶粒尺寸大小。通过紫外/可见/近红外分光光度计(美国 PerkinElmer 公司 Lambda 750 型)测量样品的吸收光谱, 测试范围 250~525 nm。在峰值波长 447 nm 的蓝光 LED 芯片上覆盖样品薄片, 用积分球光谱仪(上海半导体测试中心, 远方 PMS-50)表征样品的光致发光谱、发光效率及显色指数。

## 2 结果与分析

### 2.1 Gd 掺杂对 Ce:YAG 晶体结构的影响

样品的 XRD 图谱如图 1 所示, 四个样品的特征峰都符合立方 YAG 相(PDF 73-1370), 且没有出现杂峰, 说明制备样品呈单一的 YAG 相。YAG 晶体可以写成  $\{\text{Y}_3\}[\text{Al}_2](\text{Al}_3)\text{O}_{12}$  的形式, 其中 {}, [] 和 () 分别表示晶格中的十二面体、八面体和四面体<sup>[19]</sup>。在 YAG 中掺入  $\text{CeO}_2$  后, 原料中的  $\text{Ce}^{4+}$  会在真空烧结条件下被还原成  $\text{Ce}^{3+}$ , 并替代十二面体中  $\text{Y}^{3+}$  的位置进入晶格<sup>[20]</sup>。 $\text{Gd}^{3+}(0.1053 \text{ nm})$  和  $\text{Ce}^{3+}(0.1143 \text{ nm})$  的半径相似,  $\text{Gd}^{3+}$  同样也可以取代  $\text{Y}^{3+}(0.1019 \text{ nm})$  的位置进入晶格。又由于  $\text{Gd}^{3+}$  比  $\text{Y}^{3+}$  半径稍大, 因此 XRD 衍射峰会随着  $\text{Gd}^{3+}$  掺入量增大而左移。表 2

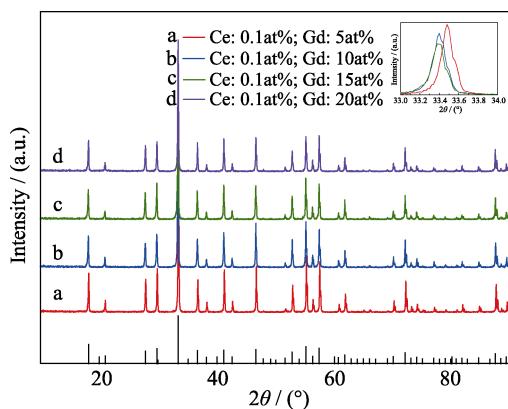


图 1 不同 Gd 掺杂浓度样品的 XRD 图谱

Fig. 1 XRD patterns of samples with different  $\text{Gd}^{3+}$  concentrations

表 2 不同 Gd 掺杂浓度样品的晶格常数

Table 2 Lattice constants for samples with different  $\text{Gd}^{3+}$  contents

Gd content	Lattice constants/nm	$E_{\text{sd}}/\text{nm}$	$V/\text{nm}^3$
5at%	1.198348	0.0002516	1.72087
10at%	1.200020	0.0001368	1.72809
15at%	1.200285	0.0002189	1.72923
20at%	1.200379	0.0001519	1.72964

列出了根据 XRD 数据计算得到不同 Gd 掺杂浓度样品的晶格常数。其中,  $E_{\text{sd}}$  表示仪器测量误差,  $V$  表示直接根据公式和测得的晶格常数计算得出的晶胞体积。

对样品断裂表面形貌做 SEM 表征可以进一步研究微观结构的变化。如图 2 所示, YAG 晶体的断裂方式主要以穿晶断裂为主, 晶粒大小的分布范围在 5~15  $\mu\text{m}$  之间, 并且 Gd<sup>3+</sup>浓度大小没有影响 YAG 晶体微观形貌及晶粒的排布, 进一步的观察也没有发现反常的晶粒或气孔存在。

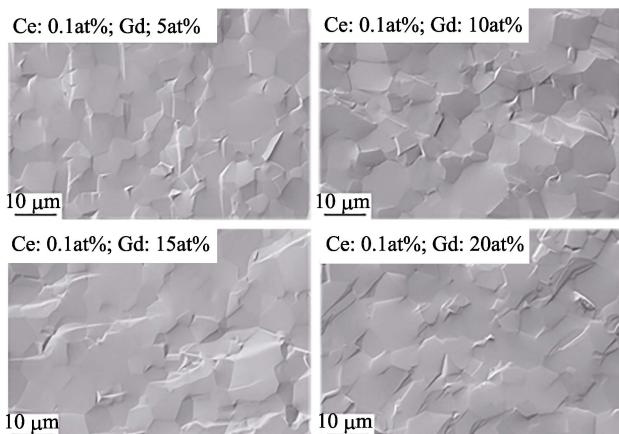


图 2 Ce:Ge:YAG 荧光陶瓷样品的 SEM 照片

Fig. 2 SEM images of the Ce:Gd:YAG ceramic phosphor plates

## 2.2 Gd 掺杂对 Ce:YAG 荧光光谱的影响

图 3 是室温下 Ce:Gd:YAG 样品的吸收光谱图, 338 和 460 nm 两个吸收峰是 Ce<sup>3+</sup>在 YAG 中的特征吸收峰, 一般会因 Ce<sup>3+</sup>浓度的变化发生轻微的移动。275 nm 处的吸收峰来自于 Gd<sup>3+</sup>的  ${}^8\text{S}_{7/2}\rightarrow{}^6\text{I}_1$  能级跃迁<sup>[21-22]</sup>。

图 4 是室温下不同 Gd 掺杂浓度, 0.3 mm 厚的 Ce:Gd:YAG 荧光陶瓷样品被 447 nm 蓝光 LED 激发产生的光致发光谱, 光谱范围为 400~700 nm。442 nm 处的发射峰是蓝光 LED 发出的蓝光穿过样品未被吸收并被探测器接收形成的。500~700 nm 处较宽的发射峰是 Ce<sup>3+</sup>的电子从 5d 激发态向 4f 基态跃迁辐射形成的。因为 Ce<sup>3+</sup>的 4f 轨道可以通过自旋耦合分裂成能量相差 2250  $\text{cm}^{-1}$  的  ${}^2\text{F}_{5/2}$  和  ${}^2\text{F}_{7/2}$  两个能级, 电子从 5d 到  ${}^2\text{F}_{5/2}$  和  ${}^2\text{F}_{7/2}$  的跃迁会分别形成 534 和 564 nm 两个发射峰。图 4 的光致发光谱峰位均落在 534~564 nm 区间。最近, Przybylinska 等<sup>[23]</sup>发现晶格场和自旋轨道相互作用后, 会将  ${}^2\text{F}_{5/2}$  和  ${}^2\text{F}_{7/2}$  分别分裂成三到四个能级, 但在经典 Dieke 图中通常只会

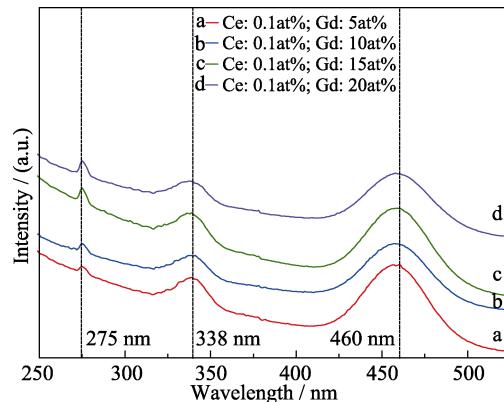


图 3 Ce:Gd:YAG 荧光陶瓷在 250~525 nm 波段的吸收光谱  
Fig. 3 Absorption spectra of the Ce:Gd:YAG phosphor ceramics in 250 nm–525 nm region

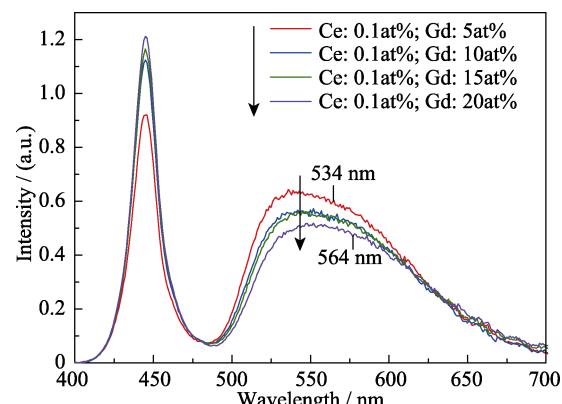


图 4 Ce:Gd:YAG 荧光陶瓷的光致发光谱

Fig. 4 PL spectra of the Ce:Gd:YAG phosphor ceramics

表现为两个能级。由于  $\text{Gd}^{3+}$  改变了 534 和 564 nm 两处发射峰之间的相对强弱, 使得 500~700 nm 的发射峰位置从 534 nm 向 564 nm 的方向红移, 因此 Ce:YAG 共掺杂 Gd 后的光致发光谱表现出红移现象。如图 4 所示, 光致发光谱的峰位随着  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂浓度的增加而向长波长方向移动。

取 D1(5at% Gd)和 D4(20at% Gd)两种  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂浓度的样品加工成不同厚度的薄片, 并测试了它们的光致发光谱如图 5 所示。对比相同蓝光激发条件下相同厚度样品的光致发光谱, 随着  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂浓度从 D1 样品的 5at% 上升到 D4 样品的 20at%, 透过蓝光的相对强度上升, 说明  $\text{Gd}^{3+}$  的掺杂减少了  $\text{Ce}^{3+}$  对蓝光的吸收。同时,  $\text{Gd}^{3+}$  浓度上升后, 黄光波段的相对发射强度降低了, 并且黄光波段的发射峰整体发生了红移。

已知样品的空间堆叠构型, 又根据实验得到的晶格常数计算了样品单胞体积, 进而计算出具有不同厚度的样品包含的晶胞数量, 如表 3 所示。根据 XRD 结果, 掺入 Gd 后, 样品的晶格常数增加, 晶胞变大, 因此在样品体积一定的情况下, 包含的晶胞数量会减少, 进而导致单位体积晶体中的  $\text{Ce}^{3+}$  减少。表 3 当中, 0.3 mm 厚的 D4 样品的晶胞数比 0.3 mm 厚的 D1 样品的晶胞数目少, 并且对蓝光的吸收也降低了; 但是, 0.24 mm 厚的 D4 样品的晶胞数目比 0.2 mm 厚的 D1 样品的晶胞数目多, 前者对

表 3 样品的晶胞个数  
Table 3 Crystal cell quantity of the samples

Sample	D1	D1	D1	D4	D4	D4
Thickness/mm	0.2	0.3	0.4	0.2	0.24	0.3
Cell number	1668964	3337928	1999369	2503446	1666140	2499211

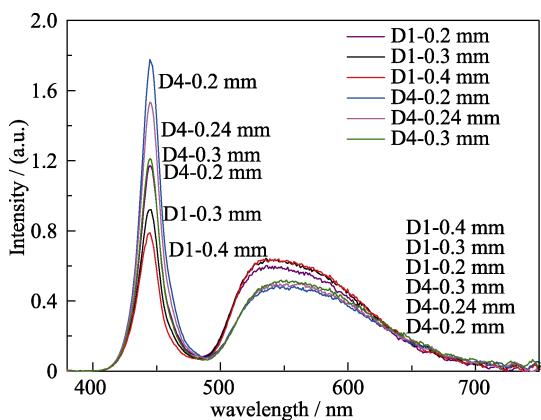


图 5 具有不同厚度的 Ce:Gd:YAG 荧光陶瓷的光致发光谱  
Fig. 5 PL spectra of the Ce:Gd:YAG phosphor ceramics with different thicknesses

蓝光的吸收仍然低于后者。这说明蓝光透过率与晶胞的数量没有直接关系,  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂才是导致  $\text{Ce}^{3+}$  对蓝光吸收减弱的主要原因。

图 5 还展示了不同厚度样品的光致发光谱。0.3 mm 厚的 D4 样品与 0.2 mm 厚的 D1 样品的蓝光透过率几乎一样, D1 的发射峰相对强度却要比 D4 的大, 说明 Gd 的掺杂会降低  $\text{Ce}^{3+}$  将蓝光转换为黄光的效率。不仅如此, 图 4 及图 5 还显示出随着 Gd 掺杂浓度的提高,  $\text{Ce}^{3+}$  的发射光谱主波长发生了改变, 从 534 nm 向 564 nm 红移。

### 2.3 Gd 掺杂对发光效率及显色指数的影响

Ce:YAG 共掺杂  $\text{Gd}^{3+}$  可以引起  $\text{Ce}^{3+}$  发射峰的红移, 同时  $\text{Gd}^{3+}$  的掺入也会影响  $\text{Ce}^{3+}$  对蓝光的吸收和转换。图 6 以 3 mm 样品为例, 总结了随着  $\text{Gd}^{3+}$  浓度的增加, 发光效率和显色指数的变化趋势。从图 6 可以看到, 随着  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂浓度的增加, 样品发光效率从 81.45 lm/W 下降到 63.70 lm/W, 而显色指数从 61.3 上升到 70.2。由此可以看出, 光效受到两种因素的影响: 掺入  $\text{Gd}^{3+}$  减少了  $\text{Ce}^{3+}$  吸收和转换蓝光的效率, 同时  $\text{Ce}^{3+}$  发光峰位红移进一步增大了光谱转换过程中的能量损耗。

## 3 结论

使用真空气相烧结法, 制备了不同  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂浓度的样品, 并用多种方法分析了  $\text{Gd}^{3+}$  对 Ce:YAG 样品物相、微观结构、荧光光谱的影响以及应用于白光 LED 时对发光性能的影响。XRD 和 SEM 结果显示随着  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂浓度的提升, Ce:YAG 晶格常数随之增加, 证明  $\text{Gd}^{3+}$  取代部分  $\text{Y}^{3+}$  进入其格位, 并且  $\text{Gd}^{3+}$  的掺入未对晶粒微观形貌和 YAG 晶粒尺寸产生影

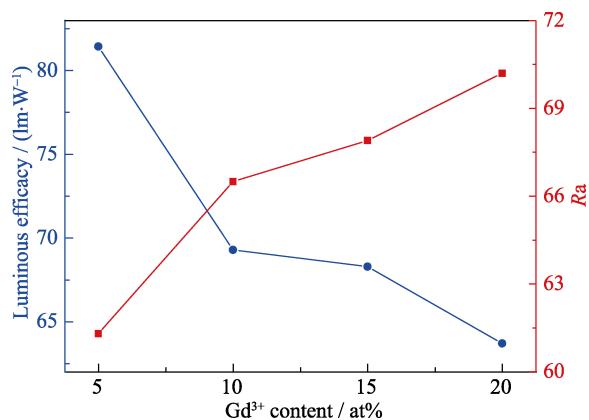


图 6 样品在蓝光芯片激发下的光效及显色指数与 Gd 掺杂浓度的关系

Fig. 6 Luminous efficacy and Ra as a function of the  $\text{Gd}^{3+}$  content for samples under blue light chip excitation

响。Ce<sup>3+</sup>吸收蓝光的能力会随着Gd<sup>3+</sup>的掺入而降低,并且Ce<sup>3+</sup>将蓝光转换成黄光的效率也会受到Gd<sup>3+</sup>掺杂的影响而降低,因此样品的白光LED光效会从未掺杂Gd的81.45 lm/W下降到63.70 lm/W。由于Ce<sup>3+</sup>受掺入Gd<sup>3+</sup>的影响,其发射光谱峰值波长从534 nm向564 nm红移,因此样品的显色指数有了显著提高,从61.3升高至70.2。总结发现,Gd的掺杂在一定程度上会降低发光效率,但是Gd的掺杂也解决了Ce:YAG荧光材料的光谱缺少红光的难题,使得黄色YAG荧光陶瓷应用于白光LED的性能得到了提高。

## 参考文献:

- [1] NISHIURA S, TANABE S, FUJIOKA K, et al. Properties of transparent Ce: YAG ceramic phosphors for white LED. *Optical Materials*, 2011, **33**(5): 688–691.
- [2] LI Y, HU L L, YANG B B, et al. Effect of sintering temperature on luminescence properties of color conversion glasses in borosilicate glasses. *Journal of Inorganic Materials*, 2017, **32**(3): 257–262.
- [3] ZHANG Y, LIU S, XU H J, et al. Preparation and performance of Ce: YAG phosphor-in-glass. *Journal of Inorganic Materials*, 2015, **30**(6): 588–592.
- [4] LI J S, SUN X D, LI X D, et al. (Y, Lu)AG: Ce phosphors synthesized by stearate melting method and their fluorescence properties. *Journal of Inorganic Materials*, 2015, **30**(2): 177–182.
- [5] GAO X, DANG J, WU L, et al. Multi-color-emitting quantum dot-based white LEDs. *Chinese Optics Letters*, 2016, **14**(11): 90–93.
- [6] LI Z, WANG H, YU B, et al. High-efficiency LED COB device combined diced V-shaped pattern and remote phosphor. *Chinese Optics Letters*, 2017, **15**(4): 56–59.
- [7] SETLUR A A. Phosphors for LED-based solid-state lighting. *Electrochemical Society Interface*, 2009, **18**(4): 26–30.
- [8] GUPTA K V K, MULEY A, YADAV P, et al. Combustion synthesis of YAG: Ce and related phosphors. *Applied Physics B-Lasers and Optics*, 2011, **105**(2): 479–484.
- [9] GEIGER C A. Garnet: a key phase in nature, the laboratory, and technology. *Elements*, 2013, **9**(6): 447–452.
- [10] FAHEEM M, LYNN K. Structural and thermal properties of Tb, Ce doped  $Y_{2.97}Gd_{0.03}Al_2Ga_3O_{12}$  single crystals. *American Journal of Analytical Chemistry*, 2014, **5**(11): 695–700.
- [11] YI X, ZHOU S, CHEN C, et al. Fabrication of Ce: YAG, Ce, Cr: YAG and Ce: YAG/Ce, Cr: YAG dual-layered composite phosphor ceramics for the application of white LEDs. *Ceramics International*, 2014, **40**(5): 7043–7047.
- [12] CHAWLA S, ROY T, MAJUMDER K, et al. Red enhanced YAG: Ce, Pr nanophosphor for white LEDs. *Journal of Experimental Nanoscience*, 2014, **9**(8): 776–784.
- [13] TANG Y R, ZHOU S M, YI X Z, et al. The Cr-doping effect on white light emitting properties of Ce: YAG phosphor ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2017, **100**(6): 2590–2595.
- [14] CHEN L, CHEN X, LIU F, et al. Charge deformation and orbital hybridization: intrinsic mechanisms on tunable chromaticity of  $Y_3Al_5O_{12}$ : Ce<sup>3+</sup> luminescence by doping Gd<sup>3+</sup> for warm white LEDs. *Scientific Reports*, 2015, **5**: 11514–1–17.
- [15] LIU B, XIANG W, LIU H, et al. Growth and spectral characteristics of Ce, Tb: YAG luminescent materials for white-LED. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2013, **41**(9): 1214–1219.
- [16] BELEN MUÑOZ-GARCIA A, SEIJO L. Ce and La single- and double-substitutional defects in yttrium aluminum garnet: first-principles study. *Journal of Physical Chemistry A*, 2011, **115**(5): 815–823.
- [17] SHI H, ZHU C, HUANG J, et al. Luminescence properties of YAG: Ce, Gd phosphors synthesized under vacuum condition and their white LED performances. *Optical Materials Express*, 2014, **4**(4): 649–655.
- [18] WU X, ZHAO D, HE X, et al. Study on the preparation and luminescence of YAG:Ce<sup>3+</sup> co-doped with Gd or La phosphor powders by low-temperature combustion synthesis. *China's Ceramics*, 2010, **46**(12): 18–20, 24.
- [19] MAREZIO M, REMEIKI J P, JAYARAMAN A. High-pressure decomposition of synthetic garnets. *Journal of Chemical Physics*, 1966, **45**(5): 1821–1824.
- [20] WANG L M, ZHUANG L Q, HUANG Y X, et al. Application of XPS in semi-quantitative estimation of Ce<sup>3+</sup> in YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphor. *Journal of East China University of Science and Technology*, 2015(4): 484–488.
- [21] CHEN J, DENG Z H, LIU Z G, et al. Optical enhancement brought by doping Gd<sup>3+</sup> ions into Ce: YAG ceramics for indoor white light-emitting diodes. *Optics Express*, 2015, **23**(7): A292–A298.
- [22] LATYNINA A, WATANABE M, INOMATA D, et al. Properties of Czochralski grown Ce, Gd:  $Y_3Al_5O_{12}$  single crystal for white light-emitting diode. *Journal of Alloys and Compounds*, 2013, **553**: 89–92.
- [23] PRZYBYLINSKA H, MA C G, BRIK M G, et al. Electronic structure of Ce<sup>3+</sup> multicenters in yttrium aluminum garnets. *Applied Physics Letters*, 2013, **102**(24): 24112–1–4.