

УДК 666.3:54-31:46.62:546.64:546.650:546.655:621.3.032.35

ПРИЛОЖЕНИЕ МЕТОДИК ДИФРАКЦИИ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ОПТИМИЗАЦИИ ТРАЕКТОРИИ СПЕКАНИЯ КОМПОЗИТНЫХ КЕРАМИК $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—Ce:(Y,Gd)AG}$

© 2023 г. А. П. Завьялов^{а, б, *}, Д. Ю. Косьянов^{б, **}

^аИнститут химии твердого тела и механохимии СО РАН,
Новосибирск, 630090 Россия

^бНОЦ “Передовые керамические материалы”, Дальневосточный федеральный университет,
Владивосток, 690922 Россия

*e-mail: Zav_Alexey@list.ru

**e-mail: Kosianov.diu@dvfu.ru

Поступила в редакцию 15.01.2023 г.

После доработки 10.03.2023 г.

Принята к публикации 10.03.2023 г.

Развитие большинства отраслей осветительной техники ставит задачу разработки передовых высокомошных белых светодиодов. Их конструкция предполагает совмещение двух базовых элементов — высокомошного синего светодиода либо лазерного диода с желтым люминофорным конвертером, способным выдерживать высокую тепловую нагрузку. В последнее время активно ведутся разработки твердотельных (в первую очередь керамических) люминофоров на основе Ce:YAG , содопированных так называемыми “красными” ионами, которые обладают высокой теплопроводностью и термической устойчивостью. Дополнительно рассматривают возможность создания на их основе композитных архитектур с вторичной термостабильной фазой корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, обладающей в разы большей теплопроводностью при близком коэффициенте теплового расширения. Разработка карты спекания сложных систем на основе твердых керамических растворов требует обязательного контроля их структурно-фазового состояния методом рентгеновской дифракции. Однако не всегда лабораторного оборудования достаточно для понимания происходящих при спекании процессов. Поэтому в настоящей работе на примере бифазных керамик $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—Ce:(Y,Gd)AG}$ проведена оптимизация траектории их спекания с применением дифракции синхротронного излучения. Композиты синтезированы методом реакционного искрового плазменного спекания порошков исходных оксидов. Показано, что при фиксированной величине прикладываемого давления 30 МПа и длительности изотермического выдерживания 15 мин единая фаза твердого раствора Ce:(Y,Gd)AG формируется лишь при температурах спекания не менее 1450°C. При таких высоких температурах спекания наблюдаются признаки рекристаллизации ввиду близости эвтектического плавления. Увеличение времени выдерживания до 30 мин позволяет снизить температуру формирования бифазной структуры до 1425°C и предотвратить нежелательную рекристаллизацию. Однако последующие повышение давления до 90 МПа приводит к сосуществованию в системе нескольких вариаций фазы типа YAG.

Ключевые слова: $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—Ce:(Y,Gd)AG}$, керамические люминофоры, YAG, Ce:YAG , $(\text{Y,Gd)AG}$, GAG, композитная керамика, реакционное искровое плазменное спекание, синхротронное излучение, рентгеновская дифракция.

DOI: 10.31857/S1028096023100229, **EDN:** ZQBUTA

ВВЕДЕНИЕ

Развитие большинства отраслей осветительной техники ставит задачу разработки передовых высокомошных белых светодиодов. Они должны обладать не только хорошими оптическими характеристиками, среди которых высокая светоотдача, индекс цветопередачи, регулируемая цветовая температура, но и тепловыми — жаропрочностью, теплопроводностью и другими свойствами

[1–3]. В последнее время в роли идеального конвертера цвета для данных систем рассматривают композитные керамики $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—Ce:(Y,Gd)AG}$ [4, 5].

YAG являются передовыми поликристаллическими матрицами благодаря хорошим термическим свойствам — термической прочности, трещиностойкости и теплопроводности ~9–14 Вт/(м · К) [6]. У Ce:(Y,Gd)AG в форме оптических керамик отсутствует явное термическое гашение интенсивности фотолюминесценции при высокой мощ-

ности и интенсивности накачки [7]. Создание бифазной керамики со второй фазой $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ возможно благодаря близости коэффициентов теплового расширения – $8.4 \times 10^{-6} \text{ 1/K}$ для $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ и $8.0 \times 10^{-6} \text{ 1/K}$ для YAG [8, 9]. Теплопроводность $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ значительно выше и составляет 32–35 Вт/(м · К) [10], что улучшает теплоотвод и позволяеткратно увеличить мощность накачки синего светодиода либо лазерного диода. При оптимизированном соотношении компонентов (составных фаз) теплопроводность композита может достигать ~19–24 Вт/(м · К) [11–14].

Ранее Д.Ю. Косьяновым и сотрудниками был предложен и успешно апробирован новый подход к получению мелкозернистых, оптически прозрачных керамик $\text{RE}^{3+}:\text{YAG}$ (RE – редкоземельный элемент) методом реакционного искрового плазменного спекания оксидных порошковых систем $\text{Y}_2\text{O}_3\text{--RE}_2\text{O}_3\text{--Al}_2\text{O}_3$ (например, [15]). Настоящая работа посвящена оптимизации траектории реакционного искрового плазменного спекания композитных керамик $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--Ce:(Y,Gd)AG}$ с применением дифракции синхротронного излучения (СИ).

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В качестве исходного сырья использовали высокочистые коммерческие оксидные порошки: $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (99.99%, Fenghe Ceramic Co., Ltd, Китай; $d \sim 0.2\text{--}0.4 \text{ мкм}$), Y_2O_3 (99.999%, Fujian Changting Golden Dragon Co., Ltd, Китай; $d \sim 5 \text{ мкм}$), Gd_2O_3 (99.999%, Jining Zhongkai New Materials Co., Ltd, Китай; $d \sim 3\text{--}5 \text{ мкм}$), CeO_2 (99.99%, Alfa Aesar Chemical Co., Ltd, Китай; $d \sim 2\text{--}3 \text{ мкм}$). Для керамик молярное соотношение $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{гранат}$ составляло 0.75, концентрации Ce^{3+} и Gd^{3+} – 0.1 и 25 ат. % в соответствии с брутто-формулой $(\text{Y}_{0.749}\text{Gd}_{0.25}\text{Ce}_{0.001})_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. В качестве комплексной спекающей добавки использовали 0.8 мас. % тетраэтоксисилана и 0.08 мас. % MgO. Порошковую смесь готовили в планетарной мельнице QM-3SP2 (Nanjing Chi Shun Technology Development Co., Ltd, Китай) в течение 12 ч со скоростью вращения 279 об./мин, используя этанол в качестве диспергатора и корундовые шарики в качестве мелющих тел. Полученную однородную суспензию высушивали при 70°C, просеивали через сито 200 меш и прокаливали в воздушной атмосфере при 600°C в течение 4 ч.

Спекание порошковых смесей при навеске 1.5 г проводили на установке SPS-515S (Dr. Sinter LABTM, Япония) в графитовом тигле с внутренним диаметром 15 мм, проложенном графитовой бумагой изнутри. Использовали двухстадийный нагрев – до 1000°C со скоростью 100 град/мин, а далее до температуры выдерживания со скоростью 50 град/мин. В двух экспериментальных сериях варьировались различные параметры спека-

ния. В “температурной” серии внешнее давление составляло 30 МПа при длительности изотермического выдерживания 15 мин, а температура спекания варьировалась – 1350, 1400, 1425 и 1450°C. В серии “по давлению” время выдерживания было увеличено до 30 мин, температура спекания составляла 1425°C (этот выбор параметров обусловлен результатами исследования предыдущей серии), а варьировалась величина прикладываемого давления – 30, 60 и 90 МПа. После спекания образцы керамик отжигали на воздухе при 1300°C в течение 5 ч для восстановления кислородных вакансий и снятия остаточных напряжений.

Для характеристики образцов применяли две методики с использованием СИ, реализованные в Центре коллективного пользования (ЦКП) “Сибирский центр синхротронного и терагерцового излучения (СЦСТИ)” на базе Уникальной научной установки (УНУ) “Комплекс ВЭПП-4 – ВЭПП-2000” в Институте ядерной физики им. Г.И. Будкера (ИЯФ) СО РАН [16].

Для качественного исследования полноты формирования твердого раствора проведена прецизионная съемка рефлекса 1004 фазы типа YAG с использованием СИ на экспериментальной станции “Прецизионная дифрактометрия и аномальное рассеяние” канала 2 накопительного кольца ВЭПП-3 в ЦКП СЦСТИ [17]. Выбор этого рефлекса обусловлен тем, что он достаточно интенсивный и, с одной стороны, не пересекается с рефлексами фазы $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, а с другой стороны, находится в “дальней” области, где лучше проявлены эффекты, связанные с “расслоением” рефлексов, соответствующих близким межплоскостным расстояниям. Съемку проводили в диапазоне $2\theta \text{ } 86.2^\circ\text{--}87.7^\circ$ с шагом 0.01° на длине волны СИ $1.5391 \pm 0.0003 \text{ \AA}$. Характеристики пиков определяли при аппроксимации функцией Войта с использованием открытого программного обеспечения для нелинейной аппроксимации кривых и анализа данных “Fityk 1.3.1” [18].

Дополнительно получены дифрактограммы с помощью двухкоординатного детектора на экспериментальной станции “Дифрактометрия в “жестком” рентгеновском диапазоне” канала 4 накопительного кольца ВЭПП-3 в ЦКП СЦСТИ [19]. Съемку проводили детекторной системой mar345 (MarResearch, Германия) на длине волны СИ $0.3685 \pm 0.0006 \text{ \AA}$, щели коллиматора размером $0.3 \times 0.3 \text{ мм}$, расстояние от образца до детектора 246.1 мм.

РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 показаны результаты съемки дифракционного рефлекса 1004 фазы типа YAG. Определенные на основе аппроксимации характеристики рефлекса представлены в табл. 1.

Для “температурной” серии можно проследить этапы формирования твердого раствора по

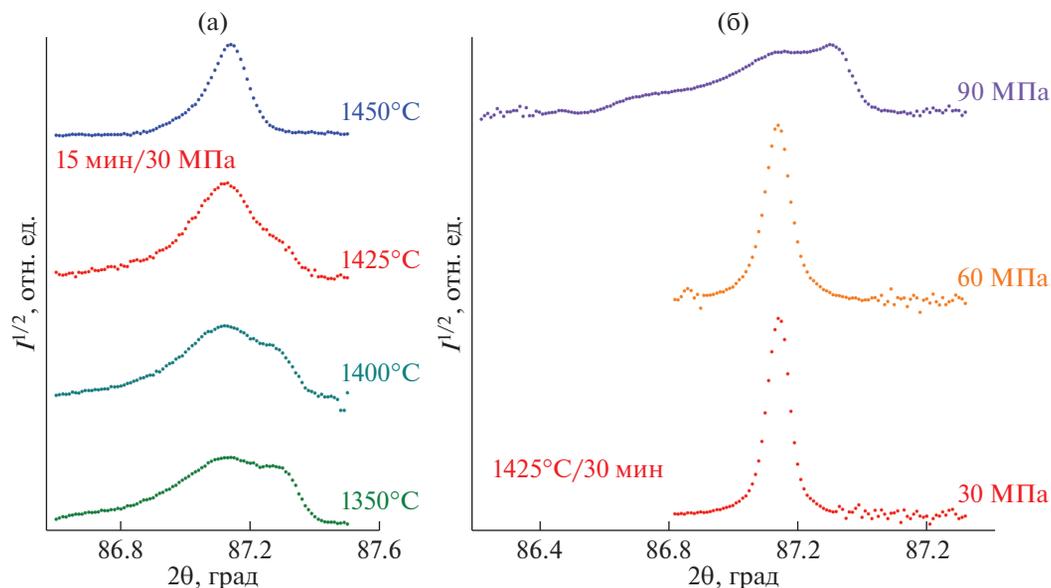


Рис. 1. Дифракционный рефлекс 1004 фазы типа YAG: а – “температурная” серия 1350–1450°C/15 мин/30 МПа; б – серия “по давлению” 1425°C/30 мин/30–90 МПа.

двойной структуре рефлекса (рис. 1а). Соотношение между вариантами твердого раствора, определенное по площадям под графиками аппроксимирующих функций, изменяется как 75.2 : 24.8–83.0 : 17.0–83.3 : 16.7 по мере увеличения температуры выдерживания 1350–1400–1425°C. Хотя последнее изменение соотношения площадей не выглядит существенным, оно сопровождается изменением отношения высоты к ширине меньшего пика на ~23% – происходит его уменьшение и

уширение, что можно трактовать как “измельчение” рецессивного варианта твердого раствора по мере его “исчезновения”. По достижении температуры 1450°C единичная структура дифракционного рефлекса свидетельствует о завершении процесса формирования твердого раствора. Только в случае образца “1350°C” средневзвешенное положение пика заметно отклоняется от значения для образца “1450°C”.

Таблица 1. Оценка параметров рефлекса 1004 фазы типа YAG

Варьируемый параметр серии	Доля по площади, %	Отношение высоты к ширине, 10 ³ отн. ед./град	Положение, град	Средневзвешенное положение, град
“Температурная” серия: 1350–1450°C/15 мин/30 МПа				
1350°C	75.2	2.8	87.14	87.18
	24.8	1.9	87.30	
1400°C	83.0	3.1	87.12	87.15
	17.0	1.4	87.29	
1425°C	83.3	6.0	87.13	87.15
	16.7	1.1	87.28	
1450°C	100	8.0	87.14	
Серия “по давлению”: 1425°C/30 мин/30–90 МПа				
30 МПа	100	43	87.14	
60 МПа	100	39	87.14	
90 МПа	8.7	0.16	86.76	87.17
	62.7	1.9	87.16	
	28.5	2.4	87.32	

При исследовании образца “1450°C” в различных точках наблюдалось существенное изменение интенсивности рефлекса 1004 фазы типа YAG. Исследование картин двумерной дифракции позволило прояснить ситуацию. Так, в случае образца “1450°C” кроме однородных колец картина содержала яркие одиночные пятна как на соответствующих фазе типа YAG кольцах, так и на кольцах фазы $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, в то время как в случае прочих образцов наблюдались только однородные кольца. Можно заключить, что в образце “1450°C” фиксируется начало рекристаллизации, свойственное поликристаллическим системам вблизи плавления. В данном случае плавление следует считать эвтектическим [20]. По этой причине следует признать температуру спекания 1450°C слишком высокой для получения мелкозернистой керамики. Проблема неоконченного формирования твердого раствора при температуре спекания 1425°C была решена увеличением времени выдерживания до 30 мин. Эти температурно-временные параметры использовали в экспериментах по оптимизации величины прикладываемого давления в ходе искрового плазменного спекания.

Для серии “по давлению” увеличение варьированного параметра приводит к иным результатам (рис. 16). Прежде всего следует отметить, что образец “1425°C” в “температурной” серии и образец “30 МПа” в серии “по давлению” отличаются только временем изотермического выдерживания. Видно, что его увеличение от 15 до 30 мин позволило достичь формирования единой фазы твердого раствора $\text{Ce:}(\text{Y,Gd})\text{AG}$ при прочих равных параметрах. Повышение давления искрового плазменного спекания от 30 до 60 МПа несколько уширило дифракционный пик. А в случае образца “90 МПа” наблюдается тройная структура рефлекса с рассчитанным по площади под пиком соотношением между составляющими 8.7 : 62.7 : 28.5 при некотором изменении средневзвешенного положения рефлекса. Исследование двумерных картин дифракции образцов серии “по давлению” не выявило никаких особенностей.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведена оптимизация траектории реакционного искрового плазменного спекания композитных керамик $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—Ce:}(\text{Y,Gd})\text{AG}$ с применением методов дифракции СИ. Особенности структурно-фазового состояния выявлены на примере двух экспериментальных серий образцов.

Для первой серии поддерживаемое при спекании давление составляло 30 МПа, а варьировалась температура изотермического выдерживания при его длительности 15 мин. Показано, что до температуры спекания 1425°C включительно сохраняется двойная структура рефлекса, свидетельствующая о незавершенности процесса формирования твердого раствора. Формирование

однофазного твердого раствора фиксируется при 1450°C, однако проявляются признаки рекристаллизации ввиду близости эвтектического плавления.

Для второй серии выбрана температура выдерживания 1425°C, его время было увеличено с 15 до 30 мин, а в качестве варьированного параметра рассматривали величину прикладываемого давления. Увеличение длительности выдерживания в режиме 1425°C/30 МПа позволило достичь формирования единой фазы твердого раствора $\text{Ce:}(\text{Y,Gd})\text{AG}$ без рекристаллизации. Повышение давления до 90 МПа привело к сосуществованию в системе нескольких вариаций фазы типа YAG.

Таким образом, чистая кристаллическая композитная система корунд—гранат $\text{Al}_2\text{O}_3\text{—Ce:}(\text{Y,Gd})\text{AG}$ с единой фазой соответствующего твердого раствора была успешно синтезирована методом реакционного искрового плазменного спекания при 1425°C/30 мин/30–60 МПа. Последующую оптимизацию режимов спекания следует вести не только с позиции формирования целевого фазового состава керамики, но и при анализе ряда ключевых характеристик получаемого материала — зеренной структуры, остаточной пористости, теплопроводности, жаропрочности и прочих.

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 20-73-10242). Завьялов А.П. благодарен Министерству науки и высшего образования Российской Федерации за финансовую поддержку в рамках государственного задания Института химии твердого тела и механохимии СО РАН (проект № FWUS-2021-0004). Косьянов Д.Ю. благодарен Совету по грантам Президента Российской Федерации (стипендия № СП-3221.2022.1) за финансовую поддержку исследований по развитию методов получения передовых керамических материалов. В работе использовано оборудование ЦКП “СЦСТИ” на базе УНУ “Комплекс ВЭПП-4—ВЭПП-2000” в ИЯФ СО РАН. Авторы также выражают благодарность О.О. Шичалину, Xin Liu и профессору Jiang Li за помощь в получении образцов керамик.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Pimputkar S., Speck J.S., Denbaars S.P., Nakamura S. // *Nat. Photonics*. 2009. V. 3. P. 180. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2009.32>
2. Li S., Wang L., Hirotsuki N., Xie R.-J. // *Laser Photonics Rev.* 2018. V. 12. № 12. P. 1800173. <https://doi.org/10.1002/lpor.201800173>
3. Schubert E.F., Kim J.K. // *Science*. 2005. V. 308. P. 1274. <https://doi.org/10.1126/science.1108712>
4. Liu X., Qian X., Hu Z., Chen X., Shi Y., Zou J., Li J. // *J. Eur. Ceram. Soc.* 2019. V. 39. P. 2149. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2019.01.054>
5. Kosyanov D.Yu., Liu X., Vornovskikh A.A., Kosianova A.A., Zakharenko A.M., Zavjalov A.P., Shichalin O.O., Mayorov V.Yu., Kuryavyi V.G., Qian X., Zou J., Li J. // *Ma-*

- ter. *Charact.* 2021. V. 172. P. 110883.
<https://doi.org/10.1016/j.matchar.2021.110883>
6. *Ling J., Zhou Y., Xu W., Lin H., Lu S., Wang B., Wang K.* // *J. Adv. Ceram.* 2020. V. 9. P. 45.
<https://doi.org/10.1007/S40145-019-0346-0>
 7. *Wang J., Tang X., Zheng P., Li S., Zhou T., Xie R.J.* // *J. Mater. Chem. C.* 2019. V. 7. P. 3901.
<https://doi.org/10.1039/C9TC00506D>
 8. *Cai P.Z., Green D.J., Messing G.L.* // *J. Am. Ceram. Soc.* 1997. V. 80. P. 1929. <https://doi.org/10.1111/J.1151-2916.1997.TB03075.X>
 9. *Cai P.Z., Green D.J., Messing G.L.* // *J. Am. Ceram. Soc.* 1997. V. 80. P. 1929.
<https://doi.org/10.1111/J.1151-2916.1997.TB03075.X>
 10. *Gupta T.K., Valentich J.* // *J. Am. Ceram. Soc.* 1971. V. 54. P. 355.
<https://doi.org/10.1111/J.1151-2916.1971.TB12315.X>
 11. *Berman R., Foster E.L., Ziman J.M.* // *Proc. R. Soc. London. A.* 1955. V. 231. P. 130.
<https://doi.org/10.1098/RSPA.1955.0161>
 12. *Cozzan C., Lheureux G., O'Dea N., Levin E.E., Graser J., Sparks T.D., Nakamura S., DenBaars S.P., Weisbuch C., Seshadri R.* // *ACS Appl. Mater. Interfaces.* 2018. V. 10. P. 5673.
<https://doi.org/10.1021/acsami.8b00074>
 13. *Liu Z., Li S., Huang Y., Wang L., Zhang H., Jiang R., Huang F., Yao X., Liu X., Huang Z.* // *J. Alloys Compd.* 2019. V. 785. P. 125.
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.01.175>
 14. *Zhao H., Li Z., Zhang M., Li J., Wu M., Li X., Chen J., Xie M., Li J., Sun X.* // *Ceram. Int.* 2020. V. 46. P. 653.
<https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.09.017>
 15. *Li S., Zhu Q., Tang D., Liu X., Ouyang G., Cao L., Hirotsaki N., Nishimura T., Huang Z., Xie R.-J.* // *J. Mater. Chem. C.* 2016. V. 4. P. 8648.
<https://doi.org/10.1039/C6TC03215J>
 16. *Kosyanov D.Yu., Vornovskikh A.A., Zakharenko A.M., Gridasova E.A., Yavetskiy R.P., Dobrotvorskaya M.V., Tolmachev A.V., Shichalin O.O., Papynov E.K., Ustinov A.Yu., Kuryavyi V.G., Leonov A.A., Tikhonov S.A.* // *Opt. Mater.* 2021. V. 112. P. 110760.
<https://doi.org/10.1016/j.optmat.2020.110760>
 17. *Piminov P.A., Baranov G.N., Bogomyagkov A.V., Berkhaev D.E., Borin V.M., Dorokhov V.L., Karmaev S.E., Kiselev V.A., Levichev E.B., Meshkov O.I., Mishnev S.I., Nikitin S.A., Nikolaev I.B., Sinyatkin S.V., Vobly P.D., Zolotarev K.V., Zhuravlev A.N.* // *Phys. Proc.* 2016. V. 84. P. 19.
<https://doi.org/10.1016/j.phpro.2016.11.005>
 18. *Shmakov A.N., Mytnichenko S.V., Tsybulya S.V., Solovyeva L.P.* // *J. Struct. Chem.* 1994. V. 35. № 2. P. 224.
<https://doi.org/10.1007/BF02578312>
 19. *Wojdyr M.* // *J. Appl. Cryst.* 2010. V. 43. P. 1126.
<https://doi.org/10.1107/S0021889810030499>
 20. *Ancharov A.I., Manakov A. Yu., Mezentsev N.A., Tolochko B.P., Sheromov M.A., Tsukanov V.M.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 2001. V. 470. № 1–2. P. 80.
[https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)01029-4](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01029-4)
 21. *Sai Q., Xia C.* // *J. Lumin.* 2017. V. 186. P. 68.
<https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2017.02.011>

Application of Synchrotron Radiation Diffraction Techniques for Optimizing the Sintering Trajectory of Al₂O₃–Ce:(Y,Gd)AG Composite Ceramics

A. P. Zavjalov^{1, 2, *}, D. Yu. Kosyanov^{2, **}

¹*Institute of Solid-State Chemistry and Mechanochemistry SB RAS, Novosibirsk, 630128 Russia*

²*SEC “Advanced Ceramic Materials”, Far Eastern Federal University, Vladivostok, 690922 Russia*

**e-mail: Zav_Alexey@list.ru*

***e-mail: Kosyanov.diu@dyfu.ru*

The development of most branches of lighting technology poses the challenge of developing advanced high-power white light-emitting diodes. Their design involves the combination of two basic elements – a high-power blue light-emitting diode or a laser diode with a yellow phosphor converter that can withstand high thermal loads. Recently, the development of solid-state (primarily ceramics) phosphors based on Ce:YAG, co-doped with the so-called “red” ions with high thermal conductivity and thermal stability, has been actively pursued. Additionally, the possibility of creating on their basis composite structures with a secondary thermostable phase of corundum α -Al₂O₃, which has many times higher thermal conductivity at a close coefficient of thermal expansion, is being considered. The development of a sintering map for complex systems based on solid ceramics solutions requires mandatory control of their structural-phase state by X-ray diffraction. However, laboratory equipment is not always sufficient to understand the processes occurring during sintering. Therefore, in this work, on the example of Al₂O₃–Ce:(Y,Gd)AG biphasic ceramics, we optimized the trajectory of their sintering using diffraction of synchrotron radiation. The composites were synthesized by the method of reactive spark plasma sintering of powders of the initial oxides. It is shown that at the fixed applied pressure of 30 MPa and an isothermal holding for 15 min, a single phase of the Ce:(Y,Gd)AG solid solution is formed only at temperatures of at least 1450°C. At such high sintering temperatures, signs of recrystallization are observed due to the proximity of eutectic melting. Increasing the exposure time to 30 min makes it possible to lower the temperature of formation of the biphasic structure to 1425°C and prevent undesirable recrystallization. However, the subsequent increase in pressure to 90 MPa leads to the coexistence of several variations of the YAG-type phase in the system.

Keywords: Al₂O₃–Ce:(Y,Gd)AG, ceramic phosphors, YAG, Ce:YAG, (Y,Gd)AG, GAG, composite ceramics, reactive spark plasma sintering, synchrotron radiation, X-ray diffraction.