

单颗粒诊断法和高通量计算发现新型荧光粉

李淑星, 解荣军

(厦门大学材料学院, 福建 厦门 361005)

摘 要: 伴随互联网智能时代的开启, 发光材料的研发模式也从传统的“试错”、“经验指导实验”向“理论预测、实验验证”的新模式转变。高效的理论预测和快速的实验验证是实现这一转变的关键所在。现阶段, 高通量计算、机器学习等理论预测方法日渐成熟, 单颗粒诊断法等实验方法更加高效, 为新型发光材料的研制奠定了理论和实验基础。简要概述了近年来在稀土发光材料领域, 基于单颗粒诊断法和高通量计算挖掘发现新型荧光粉的研究进展。

关键词: 单颗粒诊断法; 高通量计算; 新型荧光粉

中图分类号: TQ175 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)02-0318-05

网络出版时间: 2022-11-02



Discovering Novel Phosphors by Single-Particle Diagnosis and High-Throughput Calculations

LI Shuxing, XIE Rongjun

(College of Materials, Xiamen University, Xiamen 361005, Fujian, China)

Abstract: The model of developing luminescent materials has transferred from the conventional “trial and error” to “experience-guided experiments”, and further to a novel paradigm of “theoretical prediction and experimental verification”. Efficient theoretical prediction and rapid experimental verification are a key to this transformation. The theoretical prediction methods such as high-throughput calculations and machine learning are becoming more and more mature, and the corresponding experimental methods such as single-particle diagnosis are more efficient, laying a theoretical and experimental foundation for the development of novel luminescent materials. This review briefly summarizes recent research progresses on discovering new rare earth-activated luminescent materials based on single-particle diagnosis and high-throughput computation approaches.

Keywords: single-particle-diagnosis; high-throughput calculations; new phosphors

半导体照明与新型显示技术已经广泛应用于智慧照明、高清显示、医疗健康、植物生长和可见光通信等诸多领域, 市场巨大, 前景广阔。稀土发光材料是实现这一技术的关键核心材料, 其发光性能直接影响器件的光效、色温、显色指数、色域、可靠性等一系列重要的性能指标。针对半导体照明与显示技术新的发展方向和应用需求, 探索和发现新型发光材料迫在眉睫。为了实现发光材料的高效设计, 提高新型发光材料的研发效率, 提升应对高性能新材料需求的快速反应能力, 发光材料的研发模式已

经从传统的试错模式向高效简便的新模式转变。

此前, 发现新型发光材料的方法主要包括: 1) 经验规律试错法: 依据经验规律从材料数据库中筛选出合适的候选材料, 该方法具有很大的随机性, 而且效率低; 2) 组合化学法: 该方法使新材料的发现过程由传统的“叉鱼法”转变成了“网鱼法”, 是一种高通量实验方法, 但实验工作量大, 盲目性强, 需要解析粉末 XRD 衍射数据以验证是否获得了新材料; 3) 单晶生长法: 该方法需要将材料的单晶颗粒生长到 100 μm 及以上, 通过单晶结构解析, 确

收稿日期: 2022-05-24。 修订日期: 2022-06-26。

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(51832005)。

第一作者: 李淑星(1990—), 女, 博士, 助理教授。

通信作者: 解荣军(1969—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2022-05-24. Revised date: 2022-06-26.

First author: LI Shuxing (1990—), female, Ph.D., Assistant Professor.

E-mail: lishuxing@xmu.edu.cn

Correspondent author: XIE Rongjun (1969—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: rjxie@xmu.edu.cn

认其是否为新材料,受制于单晶的生长和制备条件,该方法仅限于熔点较低的材料体系,效率也较低;4) 化学结构单元取代法:该方法需要从现有材料中筛选出特定的原始结构模型,对其进行结构单元取代,难以突破原始结构,发现新材料的概率较低。

在实验方法上,由于 Eu^{2+} 、 Ce^{3+} 等发光中心的发光性能主要取决于基质材料的物理和化学性质,可以通过发光颜色区分不同物相的发光颗粒,以此为探针,研究人员发明了单颗粒诊断法,为新型发光材料的快速发现奠定了实验基础。在发光材料的基础研究领域,现有工作主要集中在对单一或少量发光材料的实验和理论研究,缺少对发光材料构效关系的共性认识和物理本质的深刻理解,难以有效指导发光材料的性能调控和优化。数据驱动方法为系统性认知发光材料的物理规律提供了可能,目前高通量计算和机器学习已被成功用于预测发光材料性能和设计新型发光材料体系,但仍处于起步阶段。本文将简要概述近年来基于单颗粒诊断法和高通量

计算发现新型荧光材料的研究进展。

1 单颗粒诊断法

2014 年,日本国立材料研究所的 Sialon 研究小组报道了单颗粒诊断法^[1],用于快速发现新型发光材料。与传统实验方法相比,单颗粒诊断法具有周期短、效率高等优点,其基本原理和步骤如图 1 所示。首先,根据对已知发光材料体系和组成的认知,筛选确认新材料的主要组成元素,构筑组成元素相图,设计不同的化学组成池,掺杂稀土发光中心 Eu^{2+} 或 Ce^{3+} ,进行荧光粉体的合成;然后,从任意烧成的粉体中筛选出不同发光颜色且粒径尺寸 $\geq 10 \mu\text{m}$ 的发光颗粒,由于 Eu^{2+} 或 Ce^{3+} 的发光与基质材料有关,不同物相的发光颗粒可以通过发光颜色进行区分;进一步地,利用高分辨率的单晶 X 射线衍射仪进行物相结构分析,确认其是否为新物相,对于新物相进一步确认其化学组成;最后,利用单颗粒荧光光谱仪测试新型发光材料的发光光谱、量子效率和热猝灭等光学性能。

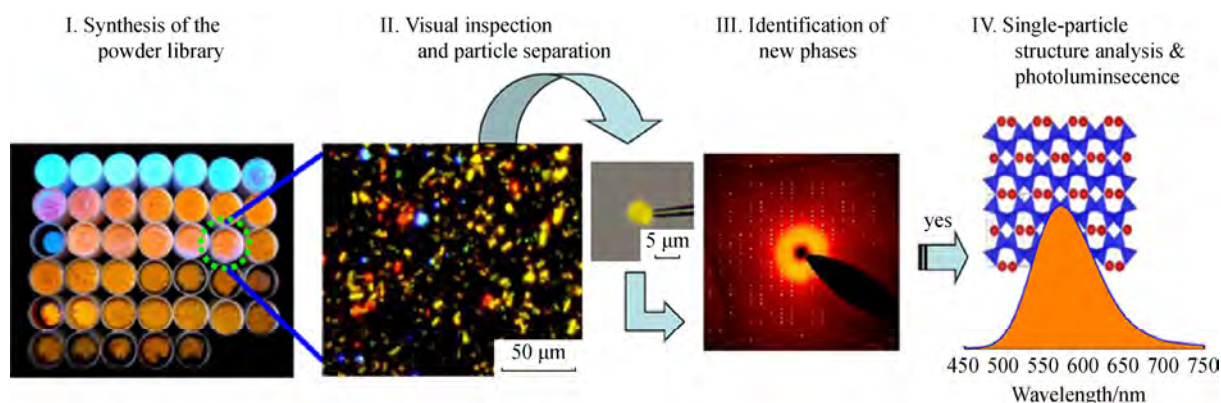


图 1 单颗粒诊断法的基本原理及步骤^[1]

Fig. 1 Basic principle and procedure of single-particle-diagnosis^[1]

自提出单颗粒诊断法以来,探索和发现新型发光材料的效率大幅度提升。日本国立材料研究所和厦门大学先后报道了多个新型氮化物荧光材料(如表 1),如在 Ba-Si-Al-N 四元体系中^[1],发现了正交晶系的 $\text{Ba}_5\text{Si}_{11}\text{Al}_7\text{N}_{25}$ [空间群 $Pn\bar{m}$ (No. 58)]和单斜晶系的 $\text{BaSi}_4\text{Al}_3\text{N}_9$ [空间群 $P2_1/c$ (No. 14)]。 $\text{Ba}_5\text{Si}_{11}\text{Al}_7\text{N}_{25}:\text{Eu}^{2+}$ 荧光颗粒在 405 nm 的蓝光激发下,发射光谱的峰值波长为 568 nm,半峰宽为 98 nm,量子效率为 $36.7\% \pm 4.2\%$,在 150 °C 时发光强度仍能保持室温下的 65%; $\text{BaSi}_4\text{Al}_3\text{N}_9:\text{Eu}^{2+}$ 荧光颗粒在 365 nm 的紫外光激发下,发射光谱的峰值波长为 500 nm,半峰宽为 67 nm。在 Ba-Li-Si-Al-N 五元体系中^[2],发现了正交晶系的 $\text{Ba}_2\text{LiAlSi}_7\text{N}_{12}$ [空间群

$Pn\bar{m}$ (No. 58)], $\text{Ba}_2\text{LiAlSi}_7\text{N}_{12}:\text{Eu}^{2+}$ 荧光颗粒在 400 nm 的紫光激发下,发射光谱的峰值波长为 515 nm,半峰宽为 61 nm,量子效率为 79%,热稳定性能优异,在 200 °C 和 300 °C 时发射光谱的峰值强度分别能保持室温下的 84% 和 76%。在 La-Sr-Si-O-N 五元体系中^[3-4],发现了六方晶系的 $\text{La}_{26-x}\text{Sr}_x\text{Si}_{41}\text{O}_{1+x}\text{N}_{80-x}:\text{Eu}^{2+}$ ($x=12.81$) [空间群 $P\bar{6}$], $\text{La}_{26-x}\text{Sr}_x\text{Si}_{41}\text{O}_{1+x}\text{N}_{80-x}:\text{Eu}^{2+}$ 荧光颗粒在 400 nm 的紫光激发下,发射光谱的峰值波长为 656 nm,半峰宽为 120 nm,由于 La/Sr 和 O/N 在晶格中的占位均为无序随机,量子效率较低($<1\%$),热稳定性能较好,在 150 °C 时发光强度仍能保持室温下的 53%。在 Sr-Si-Al-O-N 五元体系中^[5],发现了单斜晶系的

$\text{Sr}_3\text{Si}_{8-x}\text{Al}_x\text{O}_{7+x}\text{N}_{8-x}:\text{Eu}^{2+}$ ($x = 12.81$) [空间群 $C2/c$ (No. 15)], $\text{Sr}_3\text{Si}_{8-x}\text{Al}_x\text{O}_{7+x}\text{N}_{8-x}:\text{Eu}^{2+}$ 荧光颗粒在 355 nm 的紫外光激发下, 发射光谱的峰值波长为 460 nm, 半峰宽为 73 nm, 量子效率为 44.9%, 热稳定性能也较差, 热猝灭温度仅为 97 °C。在 Ca–Si–O–N 四元体系中^[6], 发现了单斜晶系的 $\text{Ca}_{1.62}\text{Eu}_{0.38}\text{Si}_5\text{O}_3\text{N}_6$ [空间群 Cm (No. 8)], $\text{Ca}_{1.62}\text{Eu}_{0.38}\text{Si}_5\text{O}_3\text{N}_6$ 荧光颗粒在 377 nm 的紫外光激发下, 发射光谱呈现出双峰发射, 峰值波长分别位于 470 nm 和 592 nm, 其中 592 nm 处的峰值强度较高, 双峰发射源于晶格中 Ca 占据 2 个格位, 且 2 个格位的配位环境差别较大。在 405 nm 激发下, 其量子效率为 22.5%, 热稳定性能较优异, 150 °C 时仍可保持室温下 64% 的发光强度。在 Sr–Si–O–N 四元体系中, 发现了单斜晶系的 $\text{Sr}_3\text{Si}_8\text{O}_4\text{N}_{10}:\text{Eu}^{2+}$ (空间群 $P2_1/n$), $\text{Sr}_3\text{Si}_8\text{O}_4\text{N}_{10}:\text{Eu}^{2+}$ 荧光颗粒在 450 nm 的蓝光激发下, 发射光谱峰值波长位于 561~601 nm (通过改变 Eu^{2+} 掺杂浓度实现了峰值波长的调控), 半峰宽为 128~138 nm, 量子效率为 32%, 热稳定性能较优异, 热猝灭温度较高为 237 °C, 相关研究成果尚未发表。在 Eu–Li–Si–Al–O–N 六元体系中^[7], 发现了三方晶系的 $\text{Eu}_{3.60}\text{LiSi}_{13.78}\text{Al}_{6.03}\text{O}_{6.82}\text{N}_{22.59}$ (空间群 $P3m1$), 它属于这一大类结

构 $\text{A}_{4-m}\text{B}_n\text{C}_{19+2m}\text{X}_{29+m}$ ($\text{A}=\text{Sr}, \text{La}, \text{Eu}, \text{Ce}; \text{B}=\text{Li}; \text{C}=\text{Si}, \text{Al}; \text{X}=\text{O}, \text{N}; 0 \leq m \leq 1; 0 \leq n \leq 1$), 在此基础上发现了 2 个新型的荧光材料: $\text{Sr}_{3.61}\text{LiSi}_{14.27}\text{Al}_{5.61}\text{O}_{6.19}\text{N}_{23.25}$ (Sr–sialon, $m=0.41, n=1$) 和 $\text{La}_{2.85}\text{Sr}_{0.76}\text{LiSi}_{14.86}\text{Al}_{4.93}\text{O}_{2.89}\text{N}_{26.51}$ (LaSr–sialon, $m=0.40, n=1$), Sr–sialon:1%Eu 和 LaSr–sialon:1%Eu 的发射光谱峰值波长分别位于 475 nm 和 470 nm, 前者的量子效率较高可以达到 55%, 但后者的量子效率较低; 另一方面, 前者的热猝灭较严重, 而后者的热稳定性较好。Sr–sialon: 1% Ce^{3+} 在 355 nm 的紫外光激发下, 发射光谱的峰值波长位于 422 nm, 半峰宽为 80 nm, 量子效率为 80%; LaSr–sialon:1% Ce^{3+} 的发射光谱与前者类似, 但由于 La 部分取代 Sr 之后减小了基质的禁带宽度, 导致其量子效率和热稳定性较差。此外, 利用单颗粒诊断法还在 Sr–B–Si–Al–N 五元体系中^[8–9], 发现了六方晶系的 $\text{Sr}_2\text{B}_{2-2x}\text{Si}_{2+3x}\text{Al}_{2-x}\text{N}_{8+x}$ (空间群 $P\bar{6}2c$), 其中, B 和 Si 在晶格中无序占位, $\text{Sr}_2\text{B}_{2-2x}\text{Si}_{2+3x}\text{Al}_{2-x}\text{N}_{8+x}$ ($x=0.15$): Eu^{2+} 在 360 nm 的紫外光激发下, 发射光谱的峰值波长位于 595~623 nm (通过增大 Eu^{2+} 浓度获得), 量子效率为 46%, 热稳定性能较差, 热猝灭温度较低为 7 °C。

表 1 基于单颗粒诊断法发现的新型荧光粉及其发光性能

Table 1 New phosphors discovered based on single-particle-diagnosis and their luminescent properties

Chemical formula	Space group	Excitation/Emission	Quantum efficiency	Thermal quenching	References
$\text{Ba}_5\text{Si}_{11}\text{Al}_7\text{N}_{25}:\text{Eu}^{2+}$	$Pnnm$	405/568 nm	36.7%	65%@150 °C	[1]
$\text{BaSi}_4\text{Al}_3\text{N}_9:\text{Eu}^{2+}$	$P2_1/c$	365/500 nm			[1]
$\text{Ba}_2\text{LiAlSi}_7\text{N}_{12}:\text{Eu}^{2+}$	$Pnnm$	400/515 nm	79%	84%@200 °C	[2]
$\text{La}_{26-x}\text{Sr}_x\text{Si}_{41}\text{O}_{1+x}\text{N}_{80-x}:\text{Eu}^{2+}$	$P\bar{6}$	400/656 nm	<1%	53%@150 °C	[3–4]
$\text{Sr}_3\text{Si}_{8-x}\text{Al}_x\text{O}_{7+x}\text{N}_{8-x}:\text{Eu}^{2+}$	$C2/c$	355/460 nm	44.9%	50%@97 °C	[5]
$\text{Ca}_{1.62}\text{Eu}_{0.38}\text{Si}_5\text{O}_3\text{N}_6:\text{Eu}^{2+}$	Cm	377/470&592 nm	22.5%	64%@150 °C	[6]
$\text{Sr}_3\text{Si}_8\text{O}_4\text{N}_{10}:\text{Eu}^{2+}$	$P2_1/n$	450/561~601 nm	32%	50%@237 °C	
Sr–sialon: Ce^{3+}	$P3m1$	355/422 nm	80%		[7]
$\text{Sr}_2\text{B}_{2-2x}\text{Si}_{2+3x}\text{Al}_{2-x}\text{N}_{8+x}:\text{Eu}^{2+}$	$P\bar{6}2c$	360/595~623 nm	46%	50%@7 °C	[8–9]

2 高通量计算

在现今大数据时代, 数据驱动是材料科学的发展趋势。早在 2011 年, 美国就提出了材料基因工程计划, 旨在借助计算机获得材料组成–结构–性能间的关系, 理论预测指导实验探索, 使材料从研发到应用的速度至少加快一倍, 成本至少降低一半。数据驱动模式的材料研发过程包括: 1) 建立高质量的数据库; 2) 构建准确的筛选判据; 3) 基于判据完成高通量计算筛选, 获得理论候选材料; 4) 借助实验验证与优化, 获得目标材料。

在高通量计算、机器学习等理论计算预测新型发光材料方面, 取得的主要研究进展包括:

1) 建立发射光谱半峰宽的物理描述子, 指导筛选窄带发射的红色荧光材料^[10]: 窄带发射的红色荧光材料对于获得高光效、宽色域的半导体照明与显示器件至关重要, 然而, 现有红色荧光材料存在发射光谱半峰宽较宽(如氮化物红色荧光材料)或者化学性能不稳定(如氟化物红色荧光材料)等缺点。为了研制出窄带发射的红色荧光材料, 加州大学圣地亚哥分校的 Shyue Ping Ong 教授基于能带结构计算, 构建了 Eu^{2+} 激活窄带红色荧光材料的电子能带

结构判据: 即 $\text{Eu}^{2+} 4f^7$ 能带最上层 2 个能级之间的劈裂值(ΔE_s) >0.1 eV, 利用这一结构判据, 对 2259 种三元/四元氮化物进行了高通量筛选, 最终将研究目标缩小至 5 种候选材料上。

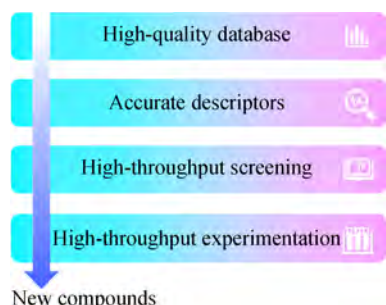


图 2 数据驱动开发新材料的原理及步骤

Fig. 2 Principles and steps of data-driven development of new materials

2) 建立稀土氧化物发光材料热猝灭性能的描述子, 指导筛选低热猝灭的荧光材料: 随着半导体照明与显示器件朝着更大功率、更高功率密度的方向发展, 对发光材料的热稳定性能提出了更高的要求, 低热猝灭的荧光材料对于获得高光效、高可靠性的光源器件十分重要。加州大学圣地亚哥分校的 Shyue Ping Ong 教授基于第一性原理分子动力学模拟、发光中心拓扑结构分析, 并结合电子能带结构计算, 建立了稀土氧化物发光材料的热猝灭性能与材料组成、发光中心局域配位结构和电子能带结构之间的定量关系, 获得了统一的热猝灭理论模型, 在此基础上建立了热猝灭性能的预测判据, 该判据的预测误差为 3.1%~7.6%^[11]。此外, 还阐明了热猝灭性能与发光中心局域配位结构刚性的内在联系, 丰富和补充了传统的发光理论。不过, 值得一提的是, 该判据的建立是以氧化物基质荧光材料的数据库为基础的, 因此该判据是否适用于其他材料体系, 尚待研究。

3) 建立 Eu^{2+} 激活荧光材料发射波长的筛选判据, 指导筛选超长发射的近红外荧光材料: 近红外荧光材料在传感、探测、无损检测领域具有巨大的应用潜力, 然而现有的 Cr^{3+} 激活的近红外荧光材料吸收效率低, 阻碍了实际应用中器件效率的提高。 Eu^{2+} 发光中心具有高吸收效率的特点, 但其发射峰值波长主要位于可见光区域, 较少大于 700 nm。为了筛选出 Eu^{2+} 激活的近红外荧光材料, 厦门大学和加州大学圣地亚哥分校合作^[12], 将第一性原理计算与传统“共价-静电相互作用模型”相结合, 统计分析了 Eu^{2+} 激活的氮化物发光材料的发射峰值波长与

基质材料的化学性质、局域配位结构、电子能带结构之间的定量关系, 建立了 Eu^{2+} 激活荧光材料的发射波长与 6 个参数(禁带宽度(E_g), 光谱极化率(α_{sp}), 结构缩合度(κ), 发光中心与最近邻原子的键长(l_{A-N}), 发光中心与第二近邻原子的键长(l_{A-A}), 发光中心局域配位结构的畸变度(θ))的定量函数关系 $M(\lambda) = f_1(E_g) + f_2(\alpha_{sp}, \kappa, l_{A-N}, l_{A-A}) + f_3(\theta, l_{A-N})$, 来预测 Eu^{2+} 激活荧光材料的发射波长, 获得预测误差为 7 nm 的预测模型。然后, 对化学通式为 $A_aB_bC_cN_x$ 的 223 个氮化物进行了高通量计算并筛选出发射波长 >700 nm 的 5 个候选材料, 并在实验上合成了 Eu^{2+} 激活的上述 5 个材料, 其发射波长的实验值与预测值吻合良好, 该研究为定向筛选特定发射波长的荧光材料奠定了基础。韩国世宗大学收集了 92 个 Eu^{2+} 激活荧光材料, 提取了 29 个化学和结构相关的特征描述符, 建立了一个由 18 个机器学习算法组成的集成机器学习平台, 用来预测 Eu^{2+} 激活荧光材料的发射波长, 获得了可接受的保留数据集测试结果, 其中 $R^2>0.6$ 、 $\text{MSE}<0.02$ 和 $\text{test_}R^2/\text{training_}R^2>0.77$ ^[13]。

此外, 美国休斯顿大学的研究者将禁带宽度(E_g)和 Debye 温度(Θ)分别作为无机荧光材料热猝灭和量子效率的简单判据, 认为禁带宽度越大, 越容易获得低热猝灭的荧光材料, 同时德拜温度越高, 越容易获得高量子效率的荧光材料。基于此, 利用机器学习和密度泛函理论计算对 2071 种化合物进行大数据计算, 最终筛选出具有宽带隙和高 Debye 温度的 $\text{NaBaB}_9\text{O}_{15}$ 化合物, 通过掺杂 Eu^{2+} , 获得低热猝灭、高量子效率(95%)的荧光粉^[14]。随后, 他们又利用机器学习技术分析了 160 种 Ce^{3+} 激活的荧光材料, 建立了预测 $\text{Ce}^{3+} 5d$ 能级质心位移的模型, 奠定了预测 Ce^{3+} 激活的荧光材料光学性能的基础^[15]。

除了构建筛选判据, 加州大学圣地亚哥分校的研究者还利用第一性原理计算、高通量计算、数据挖掘和数据库等材料信息学技术, 提出了“探索化学空间设计全新发光材料”的概念, 利用高通量离子替换算法挖掘新型荧光材料, 并与汉阳大学、厦门大学的研究者合作, 报道了如下新型荧光材料:

1) $\text{Sr}_2\text{LiAlO}_4:\text{Eu}^{2+}/\text{Ce}^{3+}$ 新型荧光材料: 虽然 Sr、Li、Al、O 属于组成荧光材料的常见元素, 且地表储量丰富, 成本低, 但是迄今为止, Sr-Li-Al-O 四元体系中尚未有化合物报道。加州大学圣地亚哥分校和汉阳大学合作, 利用 Sr-Li-Al-O 对 ICSD 数据库中的已有结构进行高通量离子替换, 获得 918 个全新的候选材料, 通过相态稳定性、

E_g 、 Θ 以及近紫外区域的吸收等判据的层层筛选,发现并在实验上成功合成一种全新的、化学稳定好、热猝灭性能优异的 $\text{Sr}_2\text{LiAlO}_4:\text{Eu}^{2+}/\text{Ce}^{3+}$ 黄绿色荧光材料^[16]。比利时鲁汶大学 Geoffroy Hautier 教授评论指出数据驱动晶体结构预测可以发现一些标准化学替换法难以获得的、令人惊讶的新型化合物,如 $\text{Sr}_2\text{LiAlO}_4$,且在实验上成功合成证实其真实存在^[17]。

2) $\text{Sr}_2\text{AlSi}_2\text{O}_6\text{N}:\text{Eu}^{2+}$ 白光荧光材料:加州大学圣地亚哥分校和厦门大学合作,基于发光中心局域配位环境的多样性利于获得宽带发光材料的认知,选择 Sr–Al–Si–O–N 作为目标材料体系,利用高通量离子替换,获得 496 个新的候选材料,又经高通量筛选和密度泛函理论计算,认为 $\text{Sr}_2\text{AlSi}_2\text{O}_6\text{N}$ 结构中 Al/Si 和 O/N 可以随机无序分布,这种特殊结构为 $\text{Sr}_2\text{AlSi}_2\text{O}_6\text{N}:\text{Eu}^{2+}$ 发射出迄今为止最宽(半峰宽 230 nm)的覆盖整个可见光光谱(400~800 nm)的白光奠定了基础^[18]。

值得一提的是,高通量计算、机器学习等数据驱动的材料研发模式的核心在于建立可靠的筛选判据,而精确筛选判据的建立依赖于大量详实可靠、高质量的数据收集。基于此,数据驱动模式的材料研发过程包括:建立高质量数据库,构建准确的筛选判据,依靠判据进行高通量筛选,获得理论上优选的候选材料,最终借助实验优化获得目标材料。现阶段,对于发光材料而言,当务之急是建立高质量的发光材料数据库,进而利用高通量计算建立不同发光性能的描述符,这是数据驱动研发新型荧光材料的基础和关键所在。

3 结束语

综上所述,相较于传统方法,单颗粒诊断法大幅度提升了探索和发现新材料的效率,但在化学空间设计(或化学组成元素选择)方面,主要依赖于传统经验,具有很大的盲目性,如果可以借助大数据计算指导化学空间的设计,将极大提高新型发光材料的研制速度。此外,基于数据驱动的高通量计算、机器学习等理论预测方法通过在海量材料数据库中快速筛选获得预期材料,成为加速新型荧光材料发现的有力工具和有效方法,为快速发现下一代发光材料带来了新的机遇,然而,该技术在发光材料领域的应用仍然处于起步阶段,先进的数据挖掘技术、有效理论预测模型、以及先进的实验验证技术是设计、筛选和发现新型发光材料的必要条件。

参考文献:

- [1] HIROSAKI N, TAKEDA T, FUNAHASHI S, et al. Discovery of new nitridosilicate phosphors for solid state lighting by the single-particle-diagnosis approach[J]. *Chem Mater*, 2014, 26(14): 4280–4288.
- [2] TAKEDA T, HIROSAKI N, FUNAHASHI S, et al. Narrow-band green-emitting phosphor $\text{Ba}_2\text{LiSi}_7\text{AlN}_{12}:\text{Eu}^{2+}$ with high thermal stability discovered by a single particle diagnosis approach[J]. *Chem Mater*, 2015, 27(17): 5892–5898.
- [3] TAKEDA T, HIROSAKI N, FUNAHASHI S, et al. New phosphor discovery by the single particle diagnosis approach[J]. *Mater Discovery*, 2015, 1: 29–37.
- [4] ZHANG Y, LI S, TAKEDA T, et al. Realizing red/orange emission of $\text{Eu}^{2+}/\text{Ce}^{3+}$ in $\text{La}_{26-x}\text{Sr}_x\text{Si}_{41}\text{O}_{x+1}\text{N}_{80-x}$ ($x=12.72\text{--}12.90$) phosphors for high color rendition white LEDs[J]. *J Mater Chem C*, 2020, 8(38): 13458–13466.
- [5] WANG X J, WANG L, TAKEDA T, et al. Blue-emitting $\text{Sr}_3\text{Si}_{8-x}\text{Al}_x\text{O}_{7+x}\text{N}_{8-x}:\text{Eu}^{2+}$ discovered by a single-particle-diagnosis approach: crystal structure, luminescence, scale-up synthesis, and its abnormal thermal quenching behavior[J]. *Chem Mater*, 2015, 27(22): 7689–7697.
- [6] WANG X J, FUNAHASHI S, TAKEDA T, et al. Structure and luminescence of a novel orange yellow-emitting $\text{Ca}_{1.62}\text{Eu}_{0.38}\text{Si}_5\text{O}_3\text{N}_6$ phosphor for warm white LEDs, discovered by a single-particle diagnosis approach[J]. *J Mater Chem C*, 2016, 4(42): 9968–9975.
- [7] WANG C Y, TAKEDA T, TEN KATE O M, et al. New deep-blue-emitting Ce-Doped $\text{A}_{4-m}\text{B}_n\text{C}_{19+2m}\text{X}_{29+m}$ ($\text{A} = \text{Sr, La}$; $\text{B} = \text{Li}$; $\text{C} = \text{Si, Al}$; $\text{X} = \text{O, N}$; $0 \leq m \leq 1$; $0 \leq n \leq 1$) phosphors for high color-rendering warm white light-emitting diodes[J]. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2019, 11(32): 29047–29055.
- [8] FUNAHASHI S, MICHIEUE Y, TAKEDA T, et al. Substitutional disorder in $\text{Sr}_{2-y}\text{Eu}_y\text{B}_{2-2x}\text{Si}_{2+3x}\text{Al}_{2-x}\text{N}_{8+x}$ ($x \approx 0.12$, $y \approx 0.10$)[J]. *Acta Crystallogr*, 2014, C70(Pt 5): 452–454.
- [9] TEN KATE O M, XIE R J, WANG C Y, et al. Eu^{2+} -Doped $\text{Sr}_2\text{B}_{2-2x}\text{Si}_{2+3x}\text{Al}_{2-x}\text{N}_{8+x}$: a boron-containing orange emitting nitridosilicate with interesting composition-dependent photoluminescence properties[J]. *Inorg Chem*, 2016, 55(21): 11331–11336.
- [10] WANG Z, CHU I H, ZHOU F, et al. Electronic structure descriptor for the discovery of narrow-band red-emitting phosphors[J]. *Chem Mater*, 2016, 28(11): 4024–4031.
- [11] AMACHRAA M, WANG Z, CHEN C, et al. Predicting thermal quenching in inorganic phosphors[J]. *Chem Mater*, 2020, 32(14): 6256–6265.
- [12] LI S, AMACHRAA M, CHEN C, et al. Efficient near-infrared phosphors discovered by parametrizing the $\text{Eu(II)} 5d\text{-to-}4f$ energy gap[J]. *Matter*, 2022, 5(6): 1924–1936.
- [13] PARK C, LEE J W, KIM M, et al. A data-driven approach to predicting band gap, excitation, and emission energies for Eu^{2+} -activated phosphors[J]. *Inorg Chem Front*, 2021, 8(21): 4610–4624.
- [14] ZHUO Y, TEHRANI A M, OLIYNYK A O, et al. Identifying an efficient, thermally robust inorganic phosphor host via machine learning[J]. *Nat Commun*, 2018, 9: 4377.
- [15] ZHUO Y, HARIYANI S, YOU S, et al. Machine learning 5d-level centroid shift of Ce^{3+} inorganic phosphors[J]. *J Appl Phys*, 2020, 128(1): 013104.
- [16] WANG Z, HA J, KIM Y H, et al. Mining unexplored chemistries for phosphors for high-color-quality white-light-emitting diodes[J]. *Joule*, 2018(2): 914–926.
- [17] GEORGE J, HAUTIER G. Chemist versus machine: traditional knowledge versus machine learning techniques[J]. *Trends Chem*, 2021, 3(2): 86–95.
- [18] LI S, XIA Y, AMACHRAA M, et al. Data-driven discovery of full-visible-spectrum phosphor[J]. *Chem Mater*, 2019, 31(16): 6286–6294.