

基于 Mie 散射理论的白光发光二极管 荧光粉散射特性研究*

钱可元[†] 马骏 付伟 罗毅

(清华大学深圳研究生院, 深圳 518055)

(2011 年 8 月 15 日收到; 2012 年 6 月 25 日收到修改稿)

基于 Mie 散射理论, 对大功率发光二极管封装中荧光粉的光激发、吸收、散射等作用进行数值模拟, 仿真计算在不同白光色温时前后向散射光的强度比例, 研究了荧光粉的颗粒大小对白光发光二极管最大光通量的影响. 对保型荧光粉涂覆结构中不同直径荧光粉颗粒和不同色温时的光效进行了分析, 还分析了同样色温下不同荧光粉颗粒直径、涂层的厚度对白光发光二极管出光的空间色温分布均匀性的影响. 研究中所采用的器件激发光谱和发射光谱都为材料的实测光谱, 而非假设的单一光谱. 研究表明: 在采用保型荧光粉涂覆结构的前提下, 当荧光粉颗粒直径为 $0.5 \mu\text{m}$ 时能使发光二极管光通量达到最大; 荧光粉颗粒越小, 发光二极管空间色温分布均匀性越好; 对给定的封装结构, 荧光粉涂层厚度为 0.8 mm 时空间色温分布均匀性最佳.

关键词: 大功率发光二极管封装, 荧光粉, 光通量, 光色分布

PACS: 42.25.Fx

1 引言

大功率发光二极管具有节能环保、寿命长、免维护、易控制等优点^[1], 是公认的下一代照明产品. 目前照明用白光发光二极管都是由封装工艺将蓝光二极管芯片加上黄色荧光粉制作而成, 因此荧光粉的特性、与发光二极管芯片发光谱的配合、涂覆的成型工艺等是影响白光发光二极管各种光学指标(如光效、色温、显色性、光色的角度分布均匀性等)的关键因素. 如何能有一个实用的理论模型指导工艺的改进, 从而避免靠经验摸索来提高白光发光二极管的质量, 成为了封装企业最关注的问题. 本文根据 Mie 散射理论, 通过软件进行仿真, 模拟白光发光二极管封装中荧光粉的激发、吸收、散射等作用, 研究发光二极管的色温、光通量

及光强分布等特性随系统不同输入参数的变化规律, 这些输入参数包括荧光粉粒子的大小、浓度、折射率、吸收光谱、发射光谱、激发光谱等.

散射现象的物理机理是物质在入射光的作用下原子发生极化并以与入射光相同的频率做强迫振动, 形成振动偶极子, 各振动偶极子发出的次波是相干的. 在均匀介质中, 这些次波叠加的结果使光线只能在折射方向上继续传播, 而在其他方向上相互抵消. 但是, 当均匀介质的均匀性被破坏(如加入微小粒子就破坏了次波的相干性)后, 这些次波发生叠加就会产生散射光, 在其他方向上出射^[2].

当微粒粒径与入射光波长可以比拟时, 发生的散射为 Mie 散射, 其原理如图 1 所示. Mie 散射理论是麦克斯韦方程组对均匀介质中的均匀球形颗粒在平面单色波照射下的严格数学解. Mie 散射的适用范围广, 它的极限情况可以用来模拟瑞利散射

* 国家高技术研究发展计划(批准号: 2008AA03A194)、深圳市重点实验室提升计划(批准号: CXB201005250038A)和深圳市科技发展计划(批准号: 2009003)资助的课题.

[†] E-mail: qianky@sz.tsinghua.edu.cn

与夫琅禾费衍射^[3].

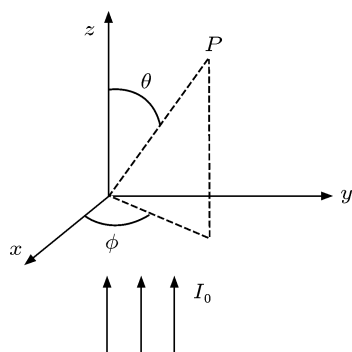


图1 Mie 散射原理示意图

定义颗粒的无因次直径 $\alpha = \pi d/\lambda$, 其中 d 为颗粒的实际直径, λ 为入射光波长^[3]. 设 m 为微粒相对于周围介质的复折射率, 则

$$m = \frac{n_1 + in_2}{n_s},$$

其中 $n_1 + in_2$ 为颗粒的折射率, n_s 为周围介质的折射率.

当粒子的直径很小^[4], 满足条件 $\alpha \ll 1$ 且 $\alpha|m - 1| \ll 1$ 时, 所引起的 Mie 散射可以用瑞利散射来近似. 当受到强度为 I_0 的入射光照射, 与散射体相距为 r , 与光轴 z 成 θ 角的观察点 P 处的散射光强 I_s 可表示为

$$I_s = \frac{\pi^4 d^6}{4\lambda^4 r^2} \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \sin^2 \theta I_0,$$

式中 I_0 为入射光强. 由此可知, 瑞利散射的散射光强 I_s 与无因次直径 α 的六次方成正比, 与入射光波长的四次方成反比.

当粒子尺寸很大, 满足条件 $\alpha \gg 1$ 且 $\alpha|m - 1| \gg 1$ 时, 所引起的散射可以用夫琅禾费衍射来近

似, 此时光强随角度的分布 $I(\theta)$ 为

$$I(\theta) = I_0 \frac{\pi^2 \alpha^4}{\lambda^2 F^2} \left[\frac{2J_1(\alpha \sin(\theta))}{\alpha \sin(\theta)} \right]^2 = I(0) \left[\frac{2J_1(x)}{x} \right]^2,$$

式中, $x = \alpha \sin(\theta) = \alpha \theta$ (小角度范围), J_1 为一阶贝塞尔函数, F 为透镜到观测屏的距离.

Mie 散射可以分为单散射和多散射. 单散射指只有一个散射粒子的散射, 一般用光强随角度的分布概率来表示. 多散射指有多个散射粒子的散射, 计算较为复杂. 本文所研究的理论基础是多散射作用.

2 Mie 散射的理论模拟

对于微观粒子的 Mie 散射行为, 可以通过光学软件进行计算. 设荧光粉粒子的折射率为 1.8, 没有虚部. 首先考察荧光粉粒子的粒径对散射的影响, 这时先不考虑激发. 当荧光粉粒子的直径 $d = 0.02, 0.2, 2 \mu\text{m}$ 时, 计算得到散射光强随角度分布的情况如图 2 所示, 图中 0° 为入射光方向, 180° 为逆入射光方向.

由图 2 可见: 随着粒子直径的减小, 其对光的散射作用加强. 粒径越小, 散射角越大, 后向光越强, 前向光与后向光的比例越接近. 当直径 $d = 0.02 \mu\text{m}$ 时, 散射引起的前向光与后向光基本相同. 目前常用的荧光粉颗粒的直径为 $2\text{--}16 \mu\text{m}$, 其散射特性基本上可以用 Mie 散射理论来描述.

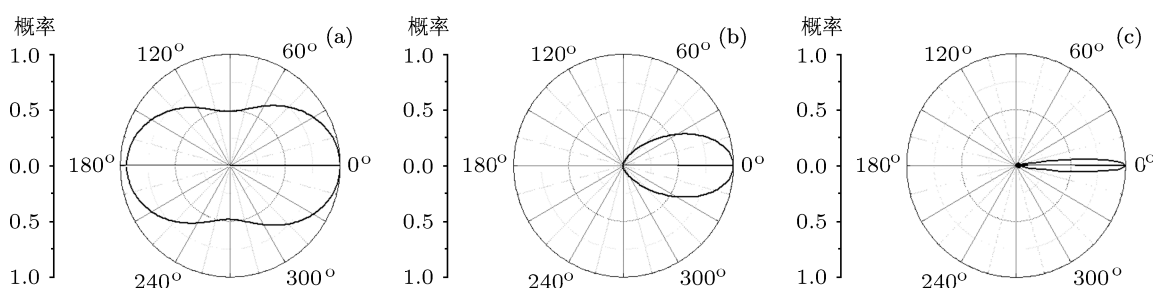


图2 粒径不同时散射光强随角度的分布 (a) $d = 0.02 \mu\text{m}$; (b) $d = 0.2 \mu\text{m}$; (c) $d = 2 \mu\text{m}$

3 实验结果及讨论

下面主要研究荧光粉粒径对白光发光二极管出光的影响和荧光粉粒径、封装层厚度对白光发光二极管光强随角度分布的影响. 散射的具体计算机仿真实验用光学软件 Lighttools 来完成.

3.1 实验参数设定

为了考察荧光粉粒子对发光二极管蓝色光辐射的散射和激发等行为, 我们先将一个蓝光发光二极管的激发光照射具有一定厚度和浓度的荧光粉层, 产生的散射情况如图 3 所示.

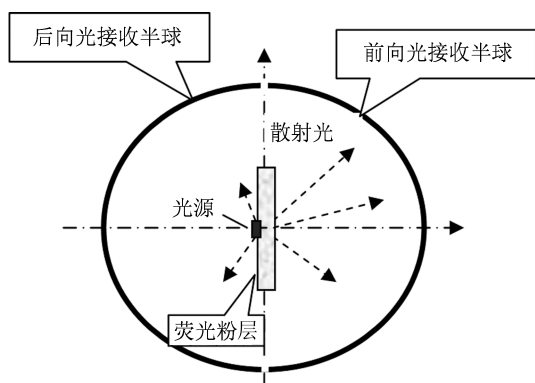


图3 荧光粉层散射情况示意图

在实验中, 设定蓝光发光二极管芯片的尺寸为 $1\text{ mm} \times 1\text{ mm} \times 0.15\text{ mm}$, 芯片的材料为 GaN, 其折射率为 $2.5^{[5,6]}$. 芯片上表面发光, 发射光谱为高斯型, 半峰宽为 20 nm , 峰值波长为 460 nm . 封装层设为矩形, 其中封装胶的折射率设为 1.5 , 荧光粉的折射率设为 $1.8^{[7]}$. 同时假设荧光粉微粒为大小一致的球形颗粒, 平均自由程及光线散射后的分布由 Mie 散射理论决定^[8-10]. 蓝光发光二极管的发射光谱如图 4 所示; 荧光粉的发射光谱、吸收光谱和激发光谱如图 5 所示.

吸收光谱决定入射光被吸收的概率, 光谱强度为 0 代表不被吸收, 光谱强度为 1 代表全部被吸收. 根据吸收光谱的定义, 通过激发光谱与发射光谱计算得到吸收光谱^[11],

$$I_a(\lambda) = I_{ex}(\lambda) / (I_{ex}(\lambda) + I_{em}(\lambda)),$$

式中, $I_a(\lambda)$ 为吸收光谱 (吸收概率随波长的变化曲线), $I_{ex}(\lambda)$ 为激发光谱, $I_{em}(\lambda)$ 为发射光谱.

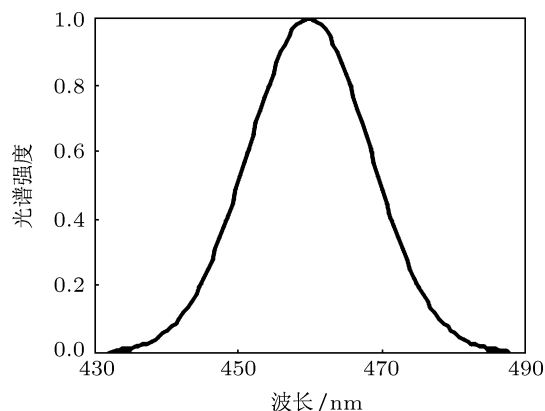


图4 蓝光发光二极管的发射光谱

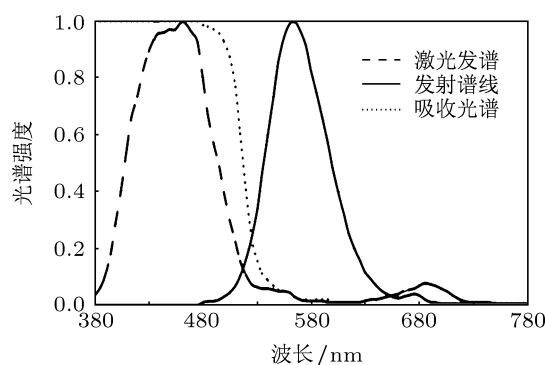


图5 荧光粉的发射光谱、吸收光谱和激发光谱

激发光谱描述的是入射光被荧光粉吸收后激发发出荧光的概率分布. 在 Lighttools 光学仿真软件中则用量子产率来表示, 即被激发出的荧光光子数与吸收光光子数的比值,

$$\gamma_q = N_1 / N_a,$$

式中, γ_q 为量子产率, N_1 为荧光光子数, N_a 为吸收光光子数.

如果入射光的波长落在荧光粉的激发光谱内, 一些能量就会被转换成荧光发出, 所发出荧光的方向将是随机的. 有些入射光未被吸收, 它们将在荧光粉粒子表面发生 Mie 散射, 改变出射方向. 但是如果入射光被荧光粉吸收后不激发荧光, 能量将会转换成热量损失掉, 这种情况在 Lighttools 光学仿真软件计算中就必须用荧光粉的损耗吸收来表示, 通常用荧光粉折射率的虚部来衡量这一损耗的大小.

3.2 荧光粉浓度对散射特性的影响

设定荧光粉粒子粒径不变, 荧光粉层的厚度、

形状不变, 改变荧光粉的浓度, 观察在不同浓度下白光发光二极管相关色温 T_c 的变化, 同时考察散射光的分布情况, 得到前后向散射光的相关色温和能量随荧光粉粒子浓度的变化关系曲线如图 6 和图 7 所示.

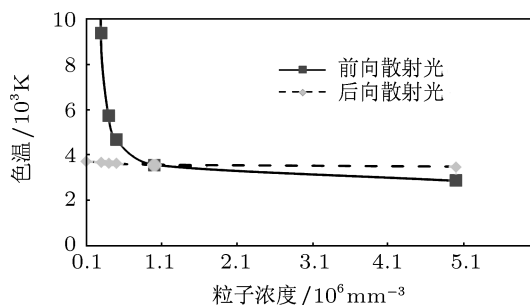


图 6 不同荧光粉粒子浓度下前后向散射光色温的变化

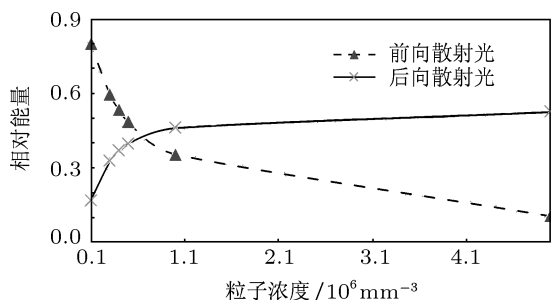


图 7 不同荧光粉粒子浓度下前后向散射光能量的变化

将收集到的光线分成前向光和后向光两部分, 设发光二极管的入射光能量为 1. 由图 6、图 7 可见: 随着荧光粉浓度的增加, 发光二极管发出的蓝光被吸收和转换成黄色光的概率逐渐增加, 使得最终的出光色温逐步降低, 同时光的散射作用也更加强烈, 前向光渐渐减少, 而后向光则不断增加. 当荧光粉粒子浓度为 6000 mm^3 左右时, 前后向光能相同. 继续增加浓度, 则后向光大于前向光, 最后趋于

占总能量的 52% 左右 (由于各种损耗使得总光能小于 1).

前后向光的色温变化趋势也不同. 前向光随荧光粉浓度减小而急剧增加, 而后向光则基本不变, 可见后向光散射的光对于蓝光和黄光大致相同, 因此后向光色温稳定.

上述散射特性对发光二极管的封装至关重要. 在实际的封装中, 总的出光是前后向光的总和, 因此对后向光的处理不仅关系到出光的效率, 同时也影响出光的色温分布, 这也是造成发光二极管空间色度不均匀的根本原因.

3.3 荧光粉散射特性对白光发光二极管光通量的影响

在荧光粉颗粒浓度变化的过程中, 随着荧光粉颗粒浓度的升高, 发光二极管光通量先上升后下降, 主要原因是在荧光粉层中存在光的散射和激发两个作用. 随着荧光粉颗粒浓度的升高, 激发出的黄光增多, 光通量上升, 但 Mie 散射也同时增强, Mie 散射会造成逆入射光方向的光线增多, 导致光效的损失. 当颗粒浓度较小时, 激发起主要的作用, 随着荧光粉颗粒浓度的增加光通量增加. 当荧光粉颗粒达到一定的浓度后, Mie 散射起主要的作用, 随着荧光粉颗粒浓度的增加造成光效损失, 光通量下降 [12].

要分析荧光粉的粒径对白光转换效率的影响, 则在改变荧光粉粒径的同时, 必须同步改变荧光粉颗粒浓度, 以保持出光的色温恒定. 为此采用反馈优化计算方法, 将色温作为目标函数, 设定为 T_{c0} , 荧光粉颗粒浓度度作为变量, 同时设定一收敛误差 ϵ , 计算不同粒径下不同粒子密度时能达到的最大光通量. 计算优化框图如图 8 所示.

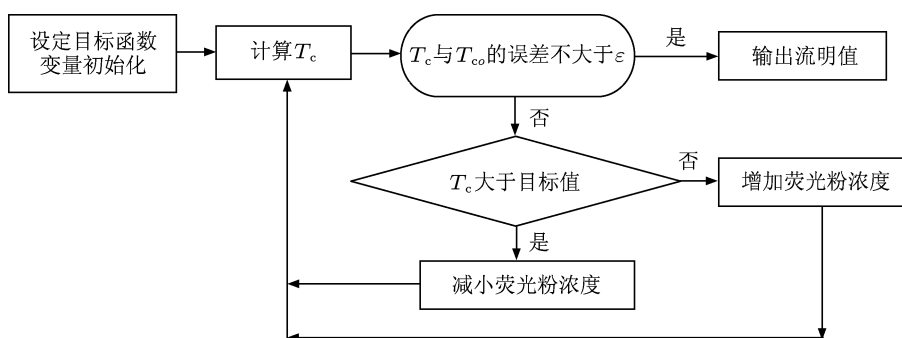


图 8 最大光通量计算优化框图

荧光粉折射率通常表示为 $n = n_1 + in_2$, 其中 n_2 为荧光粉折射率的虚部, 它将直接影响白光发光二极管的转换效率. 我们计算了不同的 n_2 值对出光效率的影响, 此时固定荧光粉颗粒半径为 $10 \mu\text{m}$, 荧光粉颗粒的浓度为 6900mm^{-3} , 所得结果如图 9 所示.

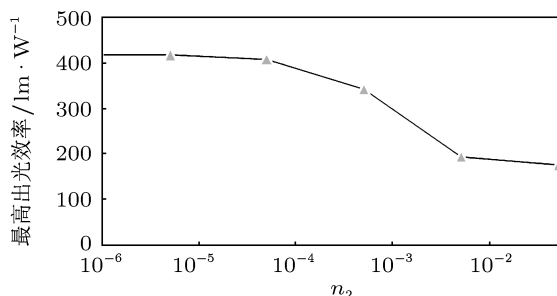


图 9 荧光粉折射率虚部对出光效率的影响

实际的荧光粉所造成的光能损耗与材料的特性相关, 不同成分和工艺的荧光粉所造成的光能损耗也不同, 相应地其折射率虚部也应不同. 通过对照实验与仿真计算获得的出光效率的数据, 可以确定每种荧光粉所造成的光能损耗大小. 实验中使用的荧光粉的折射率虚部 $n_2 \approx 0.0012$.

白光的出光效率与实际的封装结构有较大的关系. 在理论上, 粒径的不同并不会造成转换效率的变化, 但由于 Mie 散射作用的存在, 使得激发光的前后向分布不同, 而后向光在传输过程中会产生较大的损耗, 主要有封装结构界面的吸收损耗、发光二极管芯片表面及内部的损耗和多次穿越荧光粉层的损耗, 从而直接影响到整个器件的出光效率. 因此, 在分析白光的出光效率时必须与实际的封装结构相关联, 影响因素有材料表面的反射与吸收、荧光粉层的厚度、荧光粉的涂覆形状等. 不同的封装结构会对光效的计算带来一定的影响.

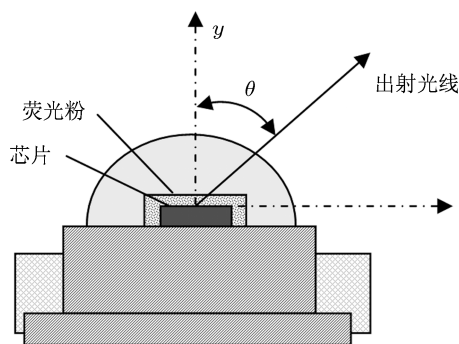


图 10 保型荧光粉涂覆白光发光二极管的封装结构

图 10 给出了一种典型的保型荧光粉涂覆封装结构. 设置基底材料的反射表面为高斯散射面, 吸收为 10%, 反射为 90%, 反射光中 20% 为镜面反射, 80% 为高斯散射, 高斯散射的半角为 25° . 荧光粉厚度设为 0.1mm , 改变荧光粉的粒径与浓度, 在荧光粉粒径不同时, 白光的出光效率也不同, 图 11 给出了粒径与出光效率的关系.

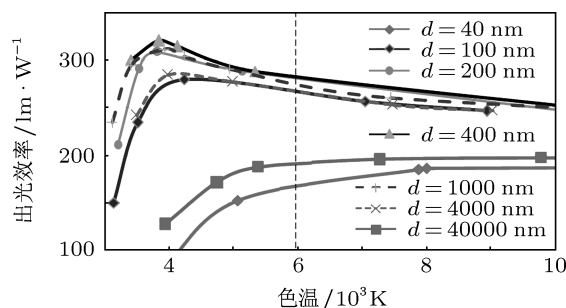


图 11 不同颗粒直径下出光效率随 T_c 的变化

由图 11 可知, 不同粒径下出光效率随色温 T_c 的变化趋势相同, 先上升后下降. 当荧光粉颗粒直径为 $0.5 \mu\text{m}$ 左右时将使白光发光二极管获得最大出光效率. 这是因为在荧光粉激发与 Mie 散射同时作用下, 不同粒径具有不同的 Mie 散射光强分布, 粒径越大, 前向光越强, 粒径越小, 等效散射截面会增加, 荧光粉的光吸收和激发作用增加, 但后向散射的增加会加大在发光二极管本体内部的吸收损耗. 这两种作用在一定条件下会达到平衡, 使发光二极管光通量达到最大.

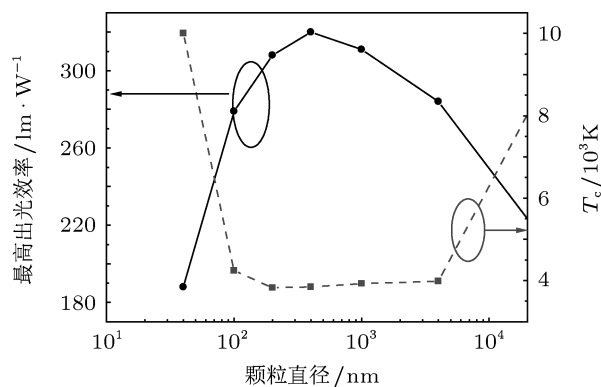


图 12 荧光粉颗粒直径与最高出光效率及色温 T_c 的关系

图 12 所示为荧光粉颗粒直径与最高光效的关系以及最大光通量所对应的色温 T_c 的关系. 不同颗粒直径的荧光粉达到最大光效的相关色温也不

同,当荧光粉颗粒的直径在 0.1—4 μm 时,达到最大光效的 T_c 基本相同, $T_c \approx 4000\text{ K}$,而对于目前常用的颗粒直径为 10 μm 的荧光粉,达到最大光效的 T_c 为 6000 K 左右.

由于荧光粉的粒径大小直接影响散射作用,因此必然会对发光二极管中蓝光与黄光的混合作用产生影响,也就会影响最后白光发光二极管在空间各个角度色度的一致性.在此我们定义出射光线与芯片的法线 y 轴的夹角 θ 为出射角(图 10),考察出射光线的色温随出射角度的变化.实验中利用不同粒径的荧光粉进行空间色温均匀性研究,其前提是要求平均色温基本相同,采用上述反馈优化计算方法,得到不同粒径时的平均色温为 6000 K,结果如图 13 所示.

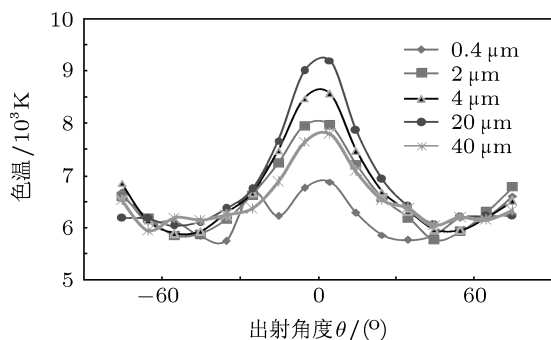


图 13 空间色温分布与荧光粉颗粒平均直径的关系

从图 13 可见,空间色温的分布都呈现出相同的规律,即沿发光二极管法线方向 ($\theta = 0^\circ$) 出射的光线色温最高,随着出射角绝对值的增大色温逐渐降低.同时也可以看出,荧光粉粒子越小,空间色度的一致性也越好.这是由于随着荧光粉粒子直径减小, Mie 散射作用加强,在有限厚度的荧光粉层中发光二极管的蓝光和激发出的黄光混合得越充分,使得各个角度的光色趋于一致.

荧光粉涂层厚度对于出光的空间色度的均匀性也有着很大的影响,为此计算了在不同荧光粉涂层厚度时白光的色温分布,计算中取白光发光二极管的平均色温 T_{av} 为一定值(实验中取 T_{av} 为 6000 K),荧光粉粒子的直径为 0.4 μm.计算所得结果如图 14 所示.可以看出,荧光粉涂层厚度对空间色温的分布影响较大,而且两者之间并非呈线性关系.定义白光的色温均匀度为

$$\sigma_K = (T_{\max} - T_{av})/T_{av},$$

式中, T_{\max} 为空间各个出射角度出射光中的最大色温, T_{av} 为平均色温.由此可以得到不同荧光粉涂层厚度对应的空间色温的均匀度,如图 15 所示.可见当涂层厚度为 0.8 mm 左右时,图 10 所示的保型涂覆能获得最佳的空间色温均匀度.

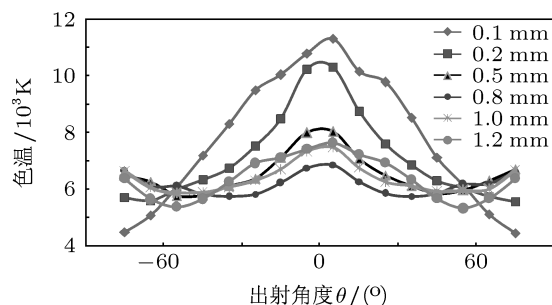


图 14 空间色温分布与荧光粉涂层厚度的关系

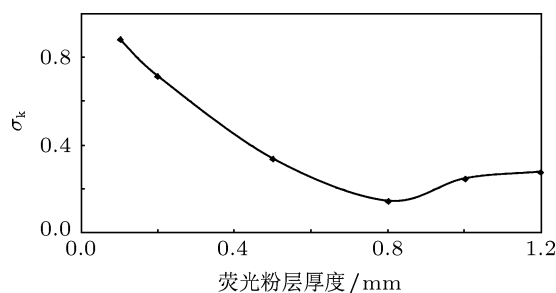


图 15 空间色温均匀度与荧光粉涂层厚度的关系

4 结论

封装对大功率白光发光二极管的性能与寿命起着至关重要的作用.本文根据 Mie 散射理论,通过软件仿真计算了荧光粉颗粒直径对光散射作用的影响,分析了前后向光的比例与散射的关系.研究中所采用的器件激发光谱和发射光谱都为材料的实测光谱,而非假设的单一光谱,从而能够真实地反映光的作用过程.研究表明:荧光粉颗粒大小对白光发光二极管光通量的影响较大,主要原因是粒径的大小会直接影响光的散射特性,粒径越小,色温越低,散射作用也越强,后向光比例越大,而后向光在具体封装结构中的传输损耗将会直接影响器件的整体出光效率.对于厚度均匀的保型封装结构,当粒子直径达到 0.5 μm 时白光发光二极管可获得最大的光效.对于不同粒径的荧光粉,达到最大光效的最佳色温也有所不同,要获得较低色温的

白光发光二极管, 可选用颗粒较小的荧光粉, 而对于 5000 K 以上的高色温白光发光二极管, 则应选用直径 5 μm 以上的荧光粉, 这一结果与实际情况相符. 荧光粉粒子的尺度对白光的空间色度一致性有较大的影响, 荧光粉粒子越小, 空间色度的一致性也越好. 荧光粉涂层的厚度对空间色度一致性也有较大的影响, 对于一定的封装形式存在一个最佳

的涂层厚度值. 如果只是采用了保形涂覆保证了荧光粉涂层厚度和粒子浓度的均为理想状态, 在这种情况下若荧光粉粒子直径和涂层厚度选择不当, 同样也无法得到理想的空间角度色度. 本文工作对于改进和优化大功率白光发光二极管的封装工艺具有一定的意义.

-
- [1] Qian K Y, Hu F, Wu H Y 2005 *Semicond. Optoelectron.* **26** 118 (in Chinese) [钱可元, 胡飞, 吴慧颖 2005 半导体光电 **26** 118]
- [2] Guo X Q 2007 *M. S. Dissertation* (Jinan: Shandong University) (in Chinese) [郭学庆 2007 硕士学位论文 (济南: 山东大学)]
- [3] Xiang J S, He J H 2007 *Appl. Opt.* **28** 363 (in Chinese) [项建胜, 何俊华 2007 应用光学 **28** 363]
- [4] Shen J Q, Liu L 2005 *China Powder Sci. Tech.* **11** 1 (in Chinese) [沈建琪, 刘蕾 2005 中国粉体技术 **11** 1]
- [5] Nguyen T, Jiun P Y, Shi F G 2009 *J. Lightwave Tech.* **27** 5145
- [6] Christian S, Joachim R K, Paul H, Peter P, Marko S, Stefan T, Franz P W 2009 *IEEE Sel. Top. Quantum Electron.* **15** 4
- [7] Luo H, Jong K K, Fred S, Jaehee C, Cheolsoo S, Yongjo P 2005 *Appl. Phys.* **86** 243505
- [8] Yamada K, Imai Y, Ishii K 2003 *J. Light Vis. Env.* **27** 10
- [9] Narendran N, Gu Y, Freyssinier-Nova J P, Zhu Y 2005 *Phys. Stat. Sol. A* **202** R60
- [10] Borbély A, Johnson S G 2004 *Proceedings of the Fourth International Conference on Solid State Lighting* (Bellingham: SPIE) p266
- [11] Borbély A, Johnson S G 2003 *Proceedings of the Third International Conference on Solid State Lighting* (Bellingham: SPIE) pp301–308
- [12] Kim J K, Luo H, Schubert E F, Cho J, Sone C, Park Y 2005 *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** 649

Research on scattering properties of phosphor for high power white light emitting diode based on Mie scattering theory*

Qian Ke-Yuan[†] Ma Jun Fu wei Luo Yi

(Graduate School at Shenzhen, Tsinghua University, Shenzhen 518055, China)

(Received 15 August 2011; revised manuscript received 25 June 2012)

Abstract

Based on Mie scattering theory, the phosphor particle's scattering effect were simulated including light excitation and absorption. The light intensity proportion changes of forward and backward scattering light with different white light emitting diode (LED) color temperature were calculated. We also analyzed the phosphor particle size effecting the luminous flux of white LED and light color distribution of angle. Devices' excitation and emission spectrums used in our simulation were real measured spectrums of the material, rather than assuming a single spectrum. Our investigation discloses that when a conformal phosphor layer was adapted, phosphor particle diameter of 0.5 μm , makes maximum luminous flux and phosphor particles smaller, light color distribution of angel is better. While for given package structure, the best spatial color uniformity can be achieved with a phosphor layer thickness of 0.8 mm.

Keywords: package of high power light emitting diode, phosphor, luminous flux, light color distribution

PACS: 42.25.Fx

* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2008AA03A194), the Upgrading Key Laboratory Program of Shenzhen, China (Grant No. CXB201005250038A), and the Science and Technology Development Program of Shenzhen, China (Grant No. 2009003).

[†] E-mail: qianky@sz.tsinghua.edu.cn