

doi:10.3788/gzxb20184709.0916002

# 粒径和浓度对 YAG : Ce 荧光膜复合材料及 pc-WLED 发光性能的影响

徐赛赛, 魏建君, 杨刘琨, 潘志华

(南京工业大学 材料科学与工程学院, 南京 210009)

**摘 要:**采用高温压膜工艺,以 YAG : Ce 黄色荧光材料和硅胶为原料制备出 YAG : Ce 荧光膜复合材料,并与蓝光 LED 复合封装出 pc-WLED.基于 Mie 理论、荧光光谱仪、快速光谱辐射计和光谱分布测量仪分别对不同荧光材料粒径和浓度制备的膜材料和 pc-WLED 的光色参数进行了计算测试,并对影响机理进行了相应分析.在相同浓度下,随着粒径减小,膜材料中激发光子平均自由程降低、散射系数升高,被吸收和转换的几率提高,引起膜材料发射强度、pc-WLED 发光效率和光色均匀度均相应提高,同浓度下粒径最优值为  $8.7 \mu\text{m}$ ;在相同粒径下,膜材料发射强度、pc-WLED 发光效率和光色均匀度与浓度成正比关系;基于发光效率、光色均匀度、色温和荧光材料用量等因素交叉综合评价,当浓度为 4%,粒径为  $8.7 \mu\text{m}$  时为最优参数,pc-WLED 色温为 5 514 K,发光效率为 136.8 lm/W (@300 mA, 6.6 V),光色均匀度为 0.759,色坐标  $x=0.332 2, y=0.359 6$ ,色点位于黑体辐射曲线附近,在不同电流下,pc-WLED 光通量和发光效率满足线性变化,即光通量:  $y=0.6816x+63.121, R^2=0.995 7$ ,发光效率:  $y=-0.062 8x+155.2, R^2=0.991 6$ .该膜材料在 pc-WLED 中的应用是可行的,同时所获得的相关规律对于实际应用具有一定的参考作用.

**关键词:**pc-WLED; YAG : Ce 荧光膜复合材料; 粒径; 浓度; 发光效率; 光色均匀度

**中图分类号:**TN383+.2; TN312+.8 **文献标识码:**A **文章编号:**1004-4213(2018)09-0916002-9

## Luminescence Properties of YAG : Ce Phosphor Film Composite Material and pc-WLED Effected by Particle Size and Concentration

XU Sai-sai, WEI Jian-jun, YANG Liu-kun, PAN Zhi-hua

(College of Material Science and Engineering, Nanjing Tech University, Nanjing 210009 China)

**Abstract:** High temperature molding technology was used to prepare YAG : Ce phosphor film composite material with YAG : Ce and silica gel as raw material, and the white light LED was packaged with blue LED light source. Based on the Mie theory, fluorescence spectrometer, rapid spectral radiometer and spectral distribution meter, the color parameters of film material and white LED were calculated and measured, and the influence mechanism of the particle size and concentration on the parameters were analyzed. At the same concentration, with the decreasing of the particle size, the mean free path decrease and the scattering coefficient and probability of absorption and conversion of the excited photon in the film material increase accordingly, The emission intensity of the film material, the luminous efficiency and homogeneity of light color of white LED are all increase correspondingly, the optimum value of the particle size is  $8.7 \mu\text{m}$  at the same concentration; At the same particle size, along with the increasing of the concentration. The emission intensity of the film material, the luminous flux and photochromic uniformity of the white LED are also increase correspondingly. When the concentration is 4% and particle

**基金项目:**国家重点研发计划(Nos.2017YFB0404300, 2017YFB0404301)资助

**第一作者:**徐赛赛(1992-),男,硕士研究生,主要研究方向为机-无机复合材料. Email: bangzhu.1234@163.com

**导师(通讯作者):**潘志华(1959-),男,教授,博士,主要研究方向为功能材料. Email: funmat\_123@163.com

**收稿日期:**2018-04-08; **录用日期:**2018-05-08

<http://www.photon.ac.cn>

size is  $8.7 \mu\text{m}$ , the white LED color temperature is  $5\,514 \text{ K}$ , the luminous efficiency is  $136.8 \text{ lm/W}$  (@ $300 \text{ mA}$ ,  $6.6 \text{ V}$ ), value of homogeneity of light color is  $0.759$ , color coordinates  $x=0.332\,2$ ,  $y=0.359\,6$ , the color point is located in the positive white light area near the blackbody radiation curve, which is the best concentration. Under different currents, the luminous efficiency and efficiency of white LED are linear, luminous flux:  $y=0.681\,6x+63.121$ ,  $R^2=0.995\,7$ , luminous efficiency:  $y=-0.062\,8x+155.2$ ,  $R^2=0.991\,6$ . This study shows the feasibility of film material in white LED applications, and the relevant laws obtained are of reference for practical applications.

**Key words:** Phosphor converted white LED; YAG : Ce phosphor film composite material; Particle size; Concentration; Luminous efficiency; Homogeneity of light color

**OCIS Codes:** 160.4670; 230.3670; 230.0250; 230.5170

## 0 引言

荧光转换型白光 LED (Phosphor Converted White LED, pc-WLED) 是目前实现白光 LED 的主流方式, 具有工艺简单、成本低和效率高等优点, 其原理是荧光材料通过吸收 LED 芯片发出的蓝色激发光, 并转换成波长黄色发射光, 进一步剩余的蓝光和出射的黄光复合实现白光<sup>[1-2]</sup>. 在这个发光-吸收-转换-复合的过程中, 荧光材料作为光-光转换中心, 其发光性能的优劣和合理的应用直接决定了所制备的 pc-WLED 的光色性能. 通常荧光材料与有机树脂混合形成荧光复合材料后直接涂覆在 LED 芯片表面, 通过烘烤固化即完成了 pc-WLED 的制备, 但这种方式所制备的 pc-WLED 由于荧光复合材料直接与芯片接触, 长期点亮过程中, 芯片发出的热量直接传导至材料内部积聚, 容易导致温度猝灭、发光强度降低现象<sup>[3]</sup>, 同时材料沉降和对光子后向散射效应, 容易引起 pc-WLED 光色均匀度的降低和光通量 (Luminous Flux, LF) 的损耗<sup>[4-5]</sup>.

针对上述涂覆式荧光复合材料在封装应用过程中所存在的问题, 相关学者提出了荧光膜复合材料 (膜材料), 即将荧光材料与基体材料通过物理或化学方法混匀制备成薄膜形式后, 再与 LED 芯片进行间隔式封装<sup>[6-7]</sup>. 这种膜材料一方面没有与芯片直接接触, 降低了温度猝灭效应, 荧光材料与基体材料的直接成膜也避免了材料沉降引起的光色均匀度降低问题, 另一方面通过提高前向出射光的强度, 相应也提高了 pc-WLED 的光通量<sup>[8-9]</sup>.

Niu<sup>[10]</sup> 基于静电纺丝工艺, 实现了以柔性聚对苯二甲酸乙二醇酯 (Polyethylene terephthalate, PET) 为基体的黄色和红色膜材料的制备, 研究了透射/吸收率, PL 谱等材料对 pc-WLED 光色性能的影响, 结合膜材料实现了 pc-WLED 在  $3214\text{--}5595 \text{ K}$  范围内色温的调控; Jia<sup>[11]</sup> 通过制备 YAG 黄色柔性膜材料, 研究证明该材料的在 UV 高能量光照下的稳定性, 所封装的 pc-WLED 在色温  $5\,480 \text{ K}$ , 显指  $68.4$  时, 发光效率达到  $121.7 \text{ lm/W}$ ; Xiao<sup>[12]</sup> 以聚碳酸酯、YAG : Ce 为原料, 基于熔融共混和模压减薄工艺制备了厚度  $0.87 \text{ mm}$  的膜材料, 通过发射光谱总结出 YAG : Ce 含量与出射强度的正比关系; Zhao<sup>[13]</sup> 采用旋涂烧结工艺制备出 YAG : Ce 超薄膜材料, 厚度仅  $5.1 \mu\text{m}$ , 封装的 pc-WLED 在色温  $4\,536 \text{ K}$ , 显指  $75.8$  时, 光效达到  $82 \text{ lm/W}$ ; Chen 等<sup>[14-15]</sup> 应用脉冲喷涂工艺制备出掺纳米  $\text{ZrO}_2$  微粒的膜材料, 利用微粒的纳米尺寸散射效应将封装的 pc-WLED 色温均匀度提高了  $58\%$ ,  $120 \text{ mA}$  驱动电流下, 光通量提高了  $2.25\%$ .

有别于上述研究, 本文通过高温压膜工艺, 以 YAG : Ce 荧光材料和硅胶为原料进行 YAG : Ce 荧光膜复合材料的制备, 并与蓝光 LED 复合进行 pc-WLED 的封装. 着重研究了荧光材料的粒径和浓度对膜材料和白光 LED 发光性能的影响规律, 结合 Mie 散射、光度和色度学理论对机理进行了相应分析. 小粒径膜材料由于低平均自由程 (Mean Free Path, MFP)、高光子散射系数可以明显提高发光效率 (Luminous Efficiency, LE)、光色均匀度 (Homogeneity of Light Color, HLC) 等光色性能; 荧光材料的浓度与 MFP 和散射系数分别成反比和正比关系, 基于发光效率、光色均匀度、色温和荧光材料用量等因素交叉综合评价, 即可确定膜材料和 pc-WLED 所用荧光材料的最优浓度和粒径; pc-WLED 的发光效率和光通量则随着电流的变化满足线性拟合规律.

## 1 实验

### 1.1 实验内容

膜材料的制备过程: 采用高温压膜工艺, 原料为 YAG : Ce 荧光材料 (大连路明, 型号 LMY-4749) 和硅

胶(道康宁,型号 OE-6550),三种粒径的荧光材料( $D_{50}=8.7\ \mu\text{m}$ 、 $D_{50}=12.8\ \mu\text{m}$ 、 $D_{50}=18.4\ \mu\text{m}$ )均按照浓度(质量分数 2%,4%,6%,8%)共 12 种实验配比进行交叉实验设计,称取原料于烧杯中,均匀搅拌后,通过真空泵进行脱泡处理,结束后将混合的原料注入深度 0.2mm 的模腔中,在 8MPa 压力条件下,80℃ 保持 0.5 h,155℃ 保持 1 h,冷却至室温后打开模腔,即可获得相应的膜材料;白光 LED 的制备:将膜材料切割成直径 8 mm 的圆片,固定于蓝光 LED 光源上方,远离 LED 芯片放置即可(图 1 所示),其中单颗 LED 芯片(晶元,型号 1734)的发射峰值波长为 450 nm,电压 3.3 V,电流 150 mA,光源中共计四颗 LED 芯片,采用两串两并的连接方式,光源电压 6.6 V,电流 300 mA.

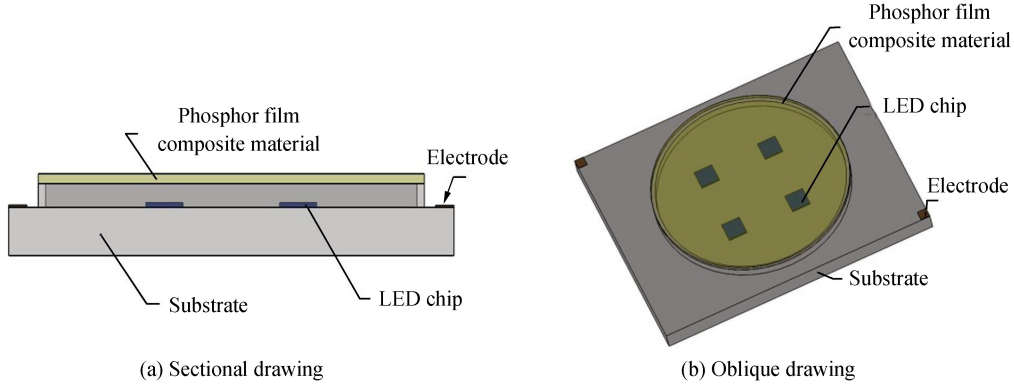


图 1 膜材料封装白光 LED 结构图  
Fig.1 White LED structure packaged by film material

## 1.2 相关测试

膜材料的激发与发射光谱采用 Hitachi F-4500 荧光光谱仪进行检测,pc-WLED 的光色性能和均匀度分别采用 Everfine HAAS-2000 快速光谱辐射计和 GO-SPEX100 光谱分布测量仪进行测试.

## 2 结果与分析

### 2.1 不同粒径的影响

本部分主要研究分别在相同的荧光材料浓度(2%、4%、6%、8%)前提下,不同的粒径( $D_{50}=8.7\ \mu\text{m}$ 、 $D_{50}=12.8\ \mu\text{m}$ 、 $D_{50}=18.4\ \mu\text{m}$ )对于所制备的膜材料和 pc-WLED 光色性能的影响.

根据 Mie 散射理论<sup>[16]</sup>,对于荧光材料粒子,当强度为  $I_{\text{inc}}$ ,波长为  $\lambda$  的非偏振单色光照射时,在散射角  $\theta$ ,距离荧光粒子  $r$  处的散射光强度  $I_{\text{sca}}$  表示为

$$I_{\text{sca}} = \frac{1}{k^2 r^2} (S_{11}) I_{\text{inc}} \quad (1)$$

$$S_{11} = \frac{1}{2} (|S_1|^2 + |S_2|^2) \quad (2)$$

$$S_1 = \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \pi_n + b_n \pi_n) \quad (3)$$

$$S_2 = \sum_n \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \tau_n + b_n \tau_n) \quad (4)$$

$$a_n = \frac{m \psi_n(mx) \psi'_n(x) - \psi_n(x) \psi'_n(mx)}{m \psi_n(mx) \xi'_n(x) - \xi_n(x) \psi'_n(mx)} \quad (5)$$

$$b_n = \frac{\psi_n(mx) \psi'_n(x) - m \psi_n(x) \psi'_n(mx)}{\psi_n(mx) \xi'_n(x) - m \xi_n(x) \psi'_n(mx)} \quad (6)$$

式中, $S_1$ 、 $S_2$  为散射振幅函数, $a_n$ 、 $b_n$  为奇偶对称扩展系数, $x$  是荧光粒子的特征尺寸, $m$  是粒子的相对折射率.

荧光粒子的散射截面和散射系数表示为

$$C_{\text{sca}} = \frac{I_{\text{sca}}}{I_{\text{inc}}} = \frac{1}{k^2 r^2} (S_{11}) = \frac{2\pi}{k^2} \sum_0^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (7)$$

$$C_{\text{ext}} = \frac{I_{\text{ext}}}{I_{\text{inc}}} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_1^{\infty} (2n+1) \text{Re}(a_n + b_n) \quad (8)$$

$$\mu_{\text{sca}} = NC_{\text{sca}} \quad (9)$$

$$\mu_{\text{ext}} = NC_{\text{ext}} \quad (10)$$

式中,  $C_{\text{sca}}$  为散射截面,  $\mu_{\text{sca}}$  为散射系数,  $N$  为单位体积内荧光粒子数目.

图 2 是基于 Mie 理论计算的荧光材料三种粒径对蓝光(波长 450 nm)的散射光强分布,从图中可以看出在  $0^\circ \sim 180^\circ$  光散射角度范围内,小粒径对应的入射光的散射强度要稍高于大粒径粒子,这也有利于后续膜材料及封装应用于 pc-WLED 发光效率的提升.

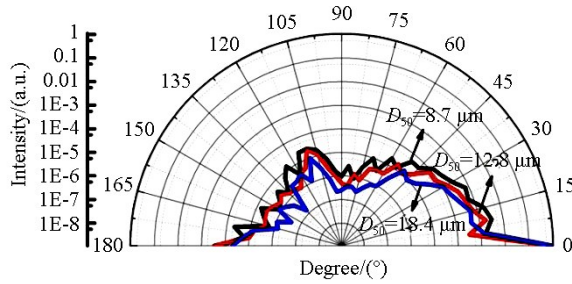


图 2 荧光材料三种粒径对蓝光的散射光强分布

Fig.2 Scattering intensity distribution of three kinds of particle size to blue light

图 3 是不同粒径时膜材料的激发与发射光谱及相应强度曲线,图 4 是经过 Mie 计算的膜材料在不同粒

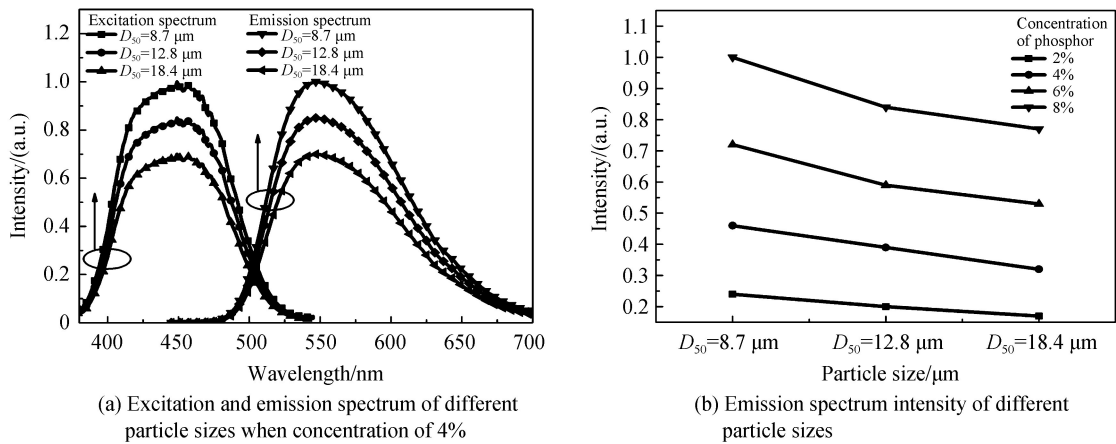


图 3 同浓度不同粒径时膜材料激发与发射光谱分布及强度图

Fig.3 Excitation and emission spectrum and intensity at different particle sizes based on the same concentration

径条件下的散射系数和平均自由程,其中平均自由程表示光子在发生上一次荧光粒子的散射到发生下一次散射时所经历的平均距离(单位 mm),可表示为消光系数的倒数,即

$$\text{MFP} = \frac{1}{\mu_{\text{ext}}} = \frac{1}{NC_{\text{ext}}} \quad (11)$$

结合图 3 和图 4 可以看出,在任意相同荧光材料浓度(2%、4%、6%、8%)条件下,随着荧光粒子粒径的减小,相应的激发与发射光谱强度表现出增强趋势,而 MFP 对应降低.其主要原因如表 1 所示,在相同的浓度条件下,随着粒径减小,粒子总数目逐渐增加,激发光子在小粒径荧光粒子间的 MFP 降低,散射系数逐渐升高,因此荧光粒子被激发的几率增

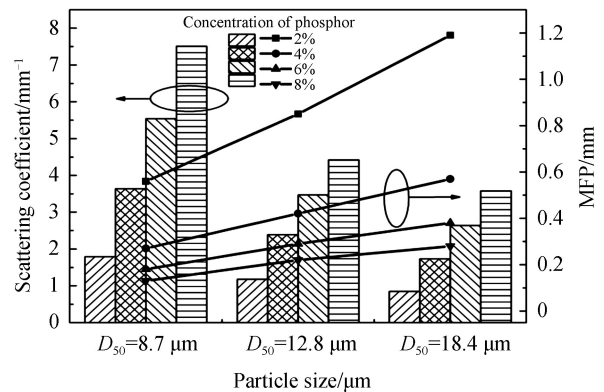


图 4 不同粒径膜材料散射系数和平均自由程  
Fig.4 Scattering coefficient and MFP of different particle sizes



表 1 不同粒径膜材料对应粒子数、散射截面、散射系数和平均自由程  
Table 1 Particle number, scattering cross section, scattering coefficient and MFP at different particle sizes

Phosphor concentration	Particle size/ $\mu\text{m}$	Particle number/ $\text{mm}^{-3}$	Scattering cross section/ $\text{mm}^2$	Scattering coefficient/ $\text{mm}^{-1}$	MFP/ $\text{mm}$
2%	8.7	14 732	$1.2 \times 10^{-4}$	1.79	0.56
	12.8	4 528	$2.6 \times 10^{-4}$	1.18	0.85
	18.4	1 524	$5.6 \times 10^{-4}$	0.85	1.19
4%	8.7	30 330	$1.2 \times 10^{-4}$	3.64	0.27
	12.8	9 198	$2.6 \times 10^{-4}$	2.39	0.42
	18.4	3 096	$5.6 \times 10^{-4}$	1.73	0.57
6%	8.7	46 215	$1.2 \times 10^{-4}$	5.54	0.18
	12.8	13 350	$2.6 \times 10^{-4}$	3.47	0.29
	18.4	4 718	$5.6 \times 10^{-4}$	2.64	0.38
8%	8.7	62 610	$1.2 \times 10^{-4}$	7.51	0.13
	12.8	16 989	$2.6 \times 10^{-4}$	4.42	0.22
	18.4	6 392	$5.6 \times 10^{-4}$	3.58	0.28

加,相应转换成成长波长光子数量也逐渐提高,进而引起膜材料光谱强度的增强。

图 5 是基于 12 组交叉实验封装的不同粒径膜材料对应的 pc-WLED 光谱分布曲线和发光效率图.其变化的规律与图 3 中膜材料光谱强度变化的规律相一致,在 pc-WLED 光谱分布曲线中,随着粒径的降低,膜材料出射光强度保持增加趋势.因此,图 5 中 550 nm 的膜材料特征发射峰强度逐渐增强,相应的发光效率也逐渐增强,这是因为发光效率是由 pc-WLED 的光通量除以输入的电功率得来,由于电功率在同一类型 pc-WLED 中为常数,因此发光效率与光通量成正比关系,而光通量的计算则包含人眼明视觉效率  $V(\lambda)$  和光

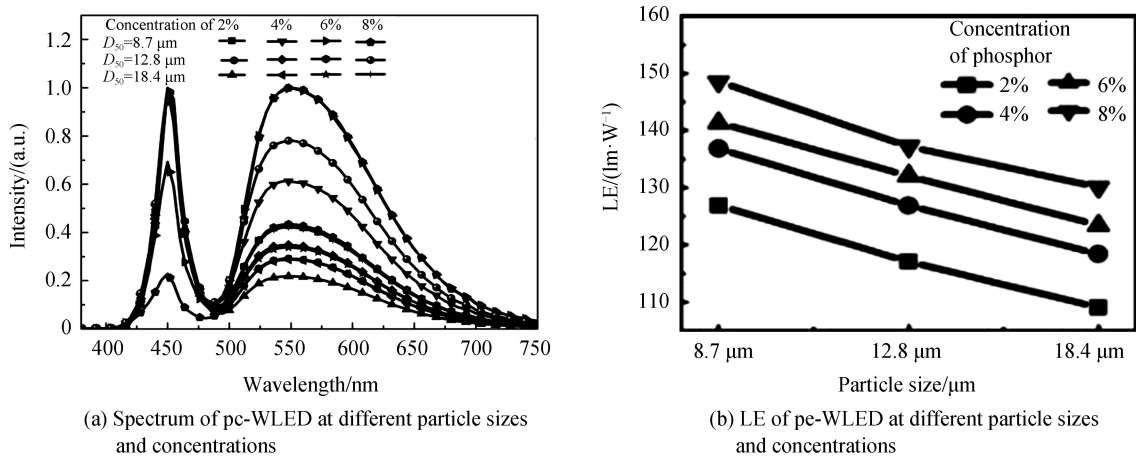


图 5 不同粒径与浓度 pc-WLED 光谱及发光效率图

Fig.5 Spectrum and LE of pc-WLED based on different concentrations and particle sizes

谱分布  $S(\lambda)$  两部分,如下所示,其中  $V(\lambda)$  是类似于峰值位于 555 nm 处的高斯曲线,因此膜材料特征发射强度的增加,也必然引起 pc-WLED 发光效率相应升高。

$$\text{LE} = \frac{\text{LF}}{\text{UI}} = \frac{683 \cdot \int V(\lambda) S(\lambda) d\lambda}{6.6(V) \times 0.3(A)} \text{lm} \cdot \text{W}^{-1} \quad (12)$$

$V(\lambda)$  为人眼明视觉效率曲线,其最高值位于 555 nm 处,  $S(\lambda)$  为白光 LED 光谱分布曲线

图 6 是不同粒径膜材料封装 pc-WLED 对应的光色均匀曲线和对应数值,测试范围在  $-60^\circ \sim 60^\circ$ ,从主图中可以看出,在 4% 的浓度条件下,随着粒径的降低,光色均匀度逐渐提高,其值依次为 0.701、0.712 和 0.759,插图中在相同的浓度条件下也表现出同样规律.此规律主要是由于粒径降低引起的同浓度条件下粒子数目和散射系数的提高,LED 芯片发射的蓝光一般为朗伯型,因此  $0^\circ$  角度对应的蓝光强度最大,色温最高,随着粒子数目和散射系数升高,对于蓝光散射和被吸收几率增加,因此  $0^\circ$  角度蓝光被吸收,色温降低,而其他角度范围内的蓝光由于发生多重散射和吸收,色温也相应降低,最终表现出随着粒径的降低,pc-WLED

整体光色均匀度升高, 综上所述可以得出, 在相同浓度条件下,  $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$  对应的小粒径荧光材料有利于提高膜材料和 pc-WLED 的发光效率和光色均匀度。

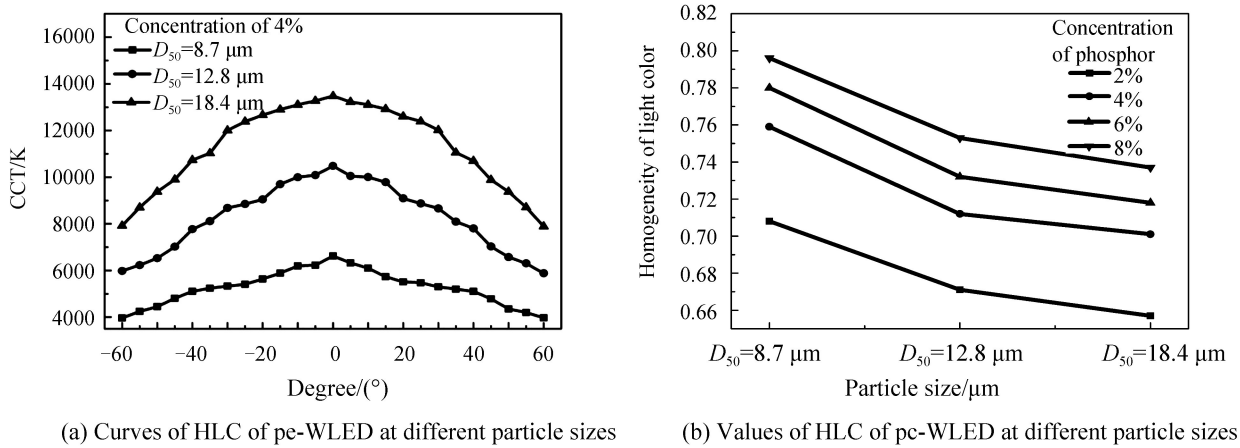


图 6 同浓度不同粒径时 pc-WLED 光色均匀曲线与数值

Fig.6 Curves and values of pc-WLED of different particle sizes under the same concentration

## 2.2 不同浓度的影响

本部分主要在上节确定的最优粒径  $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$  的基础上, 继续探索荧光材料不同浓度 (2%、4%、6% 和 8%) 对于所制备的膜材料和 pc-WLED 光色性能的影响。

图 7 表示的是荧光材料不同浓度时膜材料发射光谱及 MFP, 结合表 1 进行分析, 随着浓度的提高, 相应粒子数和散射系数也逐渐提高, MFP 则由于粒子数的提高而下降, 因此引起蓝光激发光子被吸收-转换-发射的几率升高, 表现为发射光谱强度的逐渐增强。

图 8 是相同粒径条件下不同浓度的膜材料封装成 pc-WLED 对应发光效率变化趋势图, 其中发光效率与图 5 表现出相同的变化规律, 其主要原因是人眼明视觉效率与膜材料发射光谱的大部分重叠引起, 从图中可以看出在相同的粒径条件下, 荧光材料的浓度和发光效率成正比关系。

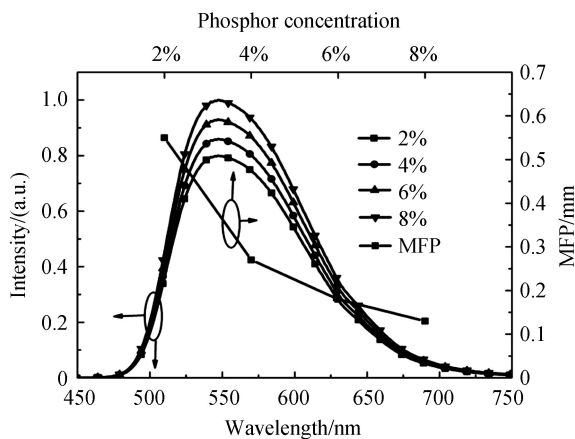


图 7 粒径  $8.7 \mu\text{m}$  不同浓度时发射光谱及平均自由程  
Fig.7 Emission spectrum and MFP of film materials at different concentrations when particle size is  $8.7 \mu\text{m}$

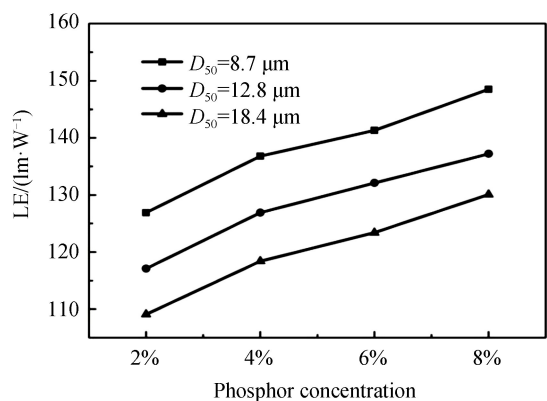


图 8 同粒径不同浓度时 pc-WLED 发光效率  
Fig.8 Luminous efficiency of pc-WLED at different concentrations under the same particle size

图 9 是不同浓度膜材料封装 pc-WLED 对应的光色均匀曲线和对应数值, 测试范围在  $-60^\circ \sim 60^\circ$ , 从主图中可以看出, 在  $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$  条件下, 随着浓度的升高, 光色均匀度逐渐提高, 其值依次为 0.708、0.759、0.780 和 0.796. 此现象原因与图 6 类似, 主要是因为同粒径条件下, 浓度的增加引起粒子数目和散射系数的提高, LED 芯片发射的蓝光一般为朗伯型, 因此  $0^\circ$  角度对应的蓝光能量相对较多, 色温相应最高, 随着粒子数目和散射系数升高, 对于蓝光散射和吸收几率增加. 因此  $0^\circ$  角度蓝光能量相对减弱, 色温相应降低, 而其他角度范围内的蓝光由于同时发生多重散射和吸收, 色温也相应降低, 最终表现出随着浓度的提高, pc-WLED

整体光色均匀度的升高.综上所述可以得出,在相同的粒径条件下,荧光材料浓度的升高有利于提高膜材料和 pc-WLED 的发光效率和光色均匀度.

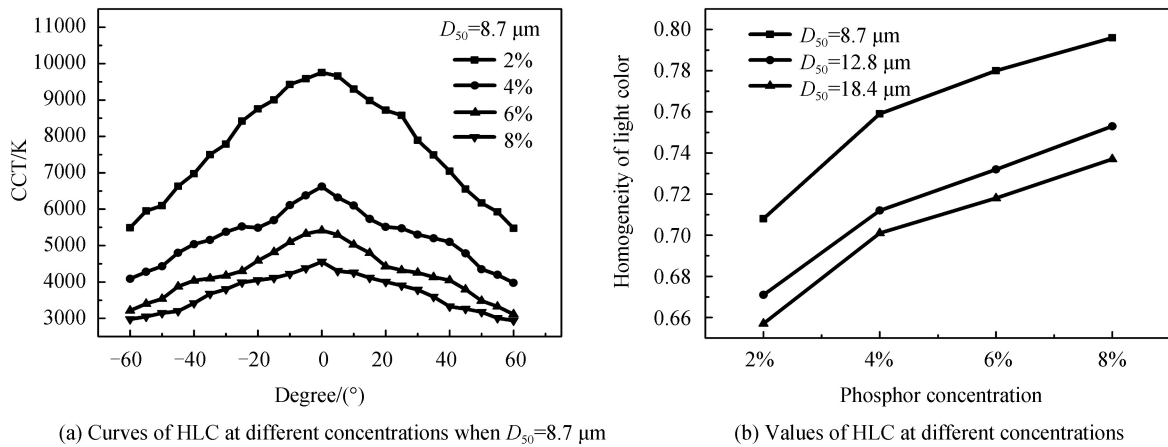


图9 同粒径不同浓度时 pc-WLED 光色均匀曲线与数值

Fig.9 Curves and values of pc-WLED of different concentrations under the same particle size

表2是经过12组交叉实验获得的不同浓度和粒径膜材料封装的pc-WLED发光效率(LE)、光色均匀度值

表2 不同浓度和粒径时 pc-WLED 的光色参数

Table 2 Photochromic parameters of pc-WLED at different concentrations and particle sizes

Parameters		2%	4%	6%	8%
$D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$	LE/(lm · W <sup>-1</sup> )	126.9	136.8	141.3	148.5
	HLC	0.708	0.759	0.780	0.796
	CCT/K	6 844	5 514	4 356	3 946
$D_{50} = 12.8 \mu\text{m}$	LE/(lm · W <sup>-1</sup> )	117.1	126.9	132.1	137.2
	HLC	0.671	0.712	0.732	0.753
	CCT/K	11 358	8588	6 895	5 050
$D_{50} = 18.4 \mu\text{m}$	LE/(lm · W <sup>-1</sup> )	109.1	118.4	123.4	130.1
	HLC	0.657	0.701	0.718	0.737
	CCT/K	28 440	11 656	8 870	6 889

(HLC)和相关色温(CCT).从表中可以看出同粒径下,LE和HLC均随着浓度增大而升高,同浓度下,随着粒径减小而升高,常规应用型pc-WLED的CCT在6500K(冷白光)以下,高于此值说明光谱中蓝光含量过多,不适合于照明应用,因此基于此原则可筛选出潜在在四组参数组合( $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$ ,浓度4%)、( $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$ ,浓度6%)、( $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$ ,浓度8%)和( $D_{50} = 12.8 \mu\text{m}$ ,浓度8%).图10是四组组合pc-WLED的色度坐标在CIE1931色度图中的分布.从图中可以看出色度坐标成线性分布,其中( $D_{50} = 8.7 \mu\text{m}$ ,浓度4%)的坐标位于黑体辐射曲线上的白光区,其余三组由于光谱中黄光能量偏多,坐标偏离白光区向黄光区移动,所发射的光偏黄,同样不适合于照明应用,同时在荧光材料的用量上,pc-WLED在相近参数时,4%的浓度也有利于降低荧光材料用量而降低制备pc-WLED的成本.因此,通过上述研究可以得出最佳浓度是4%,粒径是 $D_{50} =$

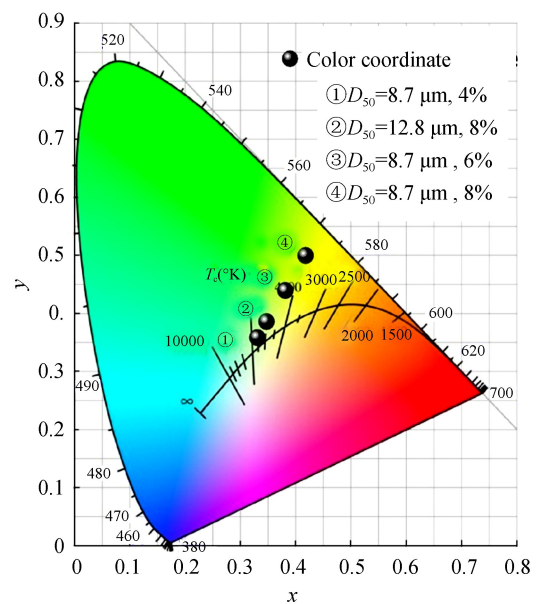


图10 四组浓度与粒径组合封装的pc-WLED的色度坐标  
Fig.10 Color coordinates of pc-WLED for four groups of concentration and particle size

8.7  $\mu\text{m}$ , 此时所封装的 pc-WLED 其 LE 为 136.8 lm/W (@300 mA, 6.6 V), CCT 为 5 514 K, HLC 为 0.759, 色度坐标  $x=0.332 2, y=0.359 6$ .

图 11 和 12 是基于浓度 4%, 粒径  $D_{50}=8.7 \mu\text{m}$  所封装的 pc-WLED 在不同电流条件下的光通量、发光效率与色度坐标变化趋势图. 图 11 中光通量和发光效率随电流的变化可以分别用线性拟合方程表示即光通量:  $y=0.681 6x+63.121, R^2=0.995 7$ , 发光效率:  $y=-0.062 8x+155.2, R^2=0.991 6$ . 光通量的增大是因为随着电流增大, 芯片中 MQWs 层中空穴-电子对数目增加, 因而引起出射蓝光强度升高, 进一步激发膜材料发射出更多光子, 实现光通量的升高; 而发光效率的降低现象则是由于空穴-电子对的无辐射复合引起, 即随着注入电流增加, 势阱中电子扩散出去的数量也随之增加, 从而引起芯片内量子效率的降低和 pc-WLED 发光效率的下降. 图 12 中随着电流的升高, 色度坐标向左下角 LED 芯片的坐标位置即蓝光区移动, 说明在电流增加条件下, LED 芯片色度变化幅度大于膜材料, 即膜材料坐标稳定性优于 LED 芯片. 图 11 和 12 现象说明在实际应用中单纯通过提高电流来实现高光通量的输出是不合理的, 因为电流的升高会引起发光效率的降低和色度的偏移, 造成电能浪费和颜色的失配.

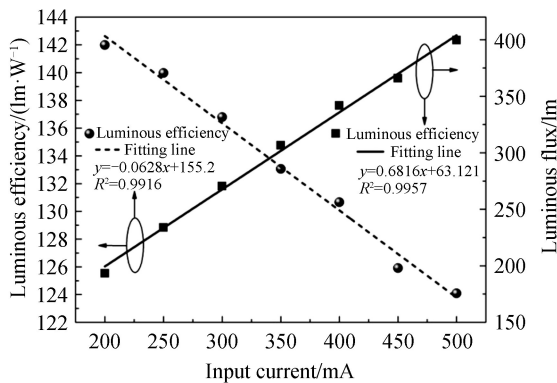


图 11 不同驱动电流下 pc-LED 光通量与发光效率  
Fig.11 Luminous flux and luminous efficiency of pc-WLED under different input currents

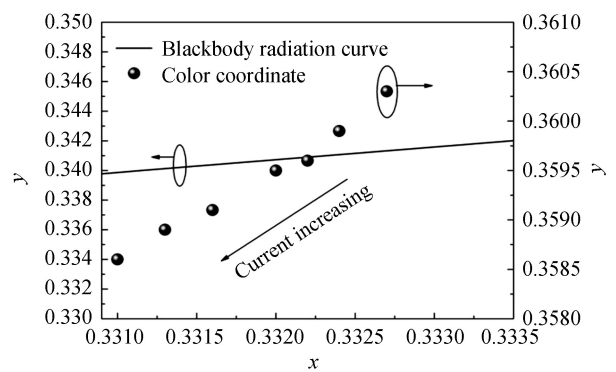


图 12 不同驱动电流下 pc-LED 色度坐标  
Fig.12 Color coordinate of pc-WLED under different input currents

### 3 结论

针对涂覆式荧光复合材料在封装应用过程中所存在的问题, 本文通过高温压膜工艺, 以 YAG:Ce 荧光材料和硅胶为原料制备出 YAG:Ce 荧光膜复合材料, 与蓝光 LED 封装出 pc-WLED. 基于 Mie 理论计算、荧光光谱仪、快速光谱辐射计和光谱分布测量仪分别对膜材料和 pc-WLED 光色参数进行了测试, 并着重对机理进行分析. 研究表明: 荧光材料粒径和浓度对膜材料和 pc-WLED 发光效率、光色均匀度等光色参数有重要的影响. 一方面, 在相同浓度条件下, 随着粒径的减小, 膜材料发射强度、pc-WLED 发光效率和光色均匀度均相应提高, 同浓度条件下粒径最优值为 8.7  $\mu\text{m}$ , 其原因是基于 Mie 理论随粒径减小, MFP 相应降低、散射系数相应升高, 从而提高了蓝光光子被吸收和转换的几率. 另一方面, 在相同粒径下, 膜材料发射强度、pc-WLED 发光效率和光色均匀度与浓度成正比关系, 基于发光效率、光色均匀度、色温和荧光材料用量等因素交叉综合评价, 当浓度为 4%, 粒径为 8.7  $\mu\text{m}$  时, pc-WLED 色温为 5 514 K, 发光效率为 136.8 lm/W (@300 mA, 6.6 V), 光色均匀度为 0.759, 色坐标  $x=0.332 2, y=0.359 6$ , 色点位于黑体辐射曲线附近, 为最优参数. pc-WLED 发光效率和光通量则随着电流的变化满足线性拟合规律, 即光通量:  $y=0.681 6x+63.121, R^2=0.995 7$ , 发光效率:  $y=-0.062 8x+155.2, R^2=0.991 6$ . 本研究说明膜材料在 pc-WLED 中应用的可行性, 同时所获得的相关规律与结论, 对于实际应用具有一定的参考作用.

#### 参考文献

- [1] CRAWFORD M H. LEDs for solid-state lighting: performance challenges and recent advances[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2009, 15(4): 1028-1040.
- [2] LIU Sheng. LED packaging for lighting applications: design, manufacturing and testing[M]. LUO Xiao-bing. Singapore: Chemical Industry Press, 2011.  
刘胜. LED 封装照明应用: 设计, 制备与测试[M]. 罗小兵, 新加坡: 化学工业出版社, 2011.
- [3] JUNTUNEN E, TAPANINEN O, SITOMANIEMI A, et al. Effect of phosphor encapsulant on the thermal resistance



- of a high-power COB LED module[J]. *IEEE Transactions on Components Packaging and Manufacturing Technology*, 2013, **3**(7): 1148-1154.
- [4] ZHU Yi-ting, NARENDRAN N. Investigation of remote-phosphor white light-emitting diodes with multi-phosphor layers[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2010, **49**(10): 100203.
- [5] ZHU Yi-ting. Investigation of the optical properties of YAG: Cephosphor[C]. NARENDRAN N, GU Yi-min. Sixth International Conference on Solid State Lighting, Proceeding of SPIE, **6337**: 63370S.
- [6] MA Rui, LU Bing, CAO Hui-qun, *et al.* Preparation and characterization of YAG : Ce thin phosphor films by pulsed laser deposition[J]. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2017, **14**: 22-30.
- [7] LIN Hang, WANG Bo, XU Ju, *et al.* Phosphor-in-glass for high-powered remote-type white AC-LED[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2014, **6**(23): 21264-21269.
- [8] YING Shang-ping, SHIU An-yung. Investigation of remote-phosphor white light-emitting diodes with improved scattered photon extraction structure[J]. *Applied Optics*, 2015, **54**(28): 30-34.
- [9] YU Xing-jian, XIE Bin, CHEN Qi, *et al.* Thermal remote phosphor coating for phosphor-converted white-light-emitting diodes[J]. *IEEE Transactions on Components Packaging & Manufacturing Technology*, 2017, **5**(9): 1253-1257.
- [10] NIU Ping-juan, XUE Wei-fang, NING Ping-fan, *et al.* Fabrication technology of LED remote fluorescent sheets based on electrostatic spinning process[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2016, **37**(5): 567-572.  
牛萍娟, 薛卫芳, 宁平凡, 等. 基于静电纺丝工艺的 LED 远程荧光片制备技术[J]. *发光学报*, 2016, **37**(5): 567-572.
- [11] JIA Jing, ZHANG Ai-qin, LI Dong-xin, *et al.* Preparation and properties of the flexible remote phosphor film for blue chip-based white LED[J]. *Materials & Design*, 2016, **102**: 8-13.
- [12] XIAO Yao, FAN Guang-han, PI Hui, *et al.* Preparation and luminescent properties of PC/YAG : Ce fluorescent resin [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2013, **34**(11): 1419-1423.  
肖瑶, 范广涵, 皮辉, 等. PC/YAG : Ce 荧光树脂的制备及光谱分析[J]. *发光学报*, 2013, **34**(11): 1419-1423.
- [13] ZHAO Yun-yun, XU Hua-rui, ZHANG Xiu-yun, *et al.* Facile synthesis of YAG : Ce<sup>3+</sup> thick films for phosphor converted white light emitting diodes[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2015, **35**(13): 3761-3764.
- [14] CHEN Hsin-chu, CHEN Kuo-ju, LIN Chien-chung, *et al.* Improvement in uniformity of emission by ZrO<sub>2</sub> nanoparticles for white LEDs[J]. *Nanotechnology*, 2012, **23**: 265201.
- [15] LIU Guo-feng, FU Zuo-ling. Synthesis and temperature sensing of CaF<sub>2</sub> : Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup> nanoparticles with upconversion fluorescence [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2017, **38**(2): 133-138.  
刘国锋, 付作岭. 上转换纳米粒子 CaF<sub>2</sub> : Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup> 的合成及其温敏特性[J]. *发光学报*, 2017, **38**(2): 133-138.
- [16] DU Hong. Mie-scattering calculation[J]. *Applied Optics*, 2004, **43**(9): 1951-1956.

**Foundation item:** National Key Research and Development Program of China(Nos.2017YFB0404300,2017YFB0404301)

引用格式: XU Sai-sai, WEI Jian-jun, YANG Liu-kun, *et al.* Luminescence Properties of YAG : Ce Phosphor Film Composite Material and pc-WLED Effected by Particle Size and Concentration[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2018, **47**(9): 0916002

徐赛赛, 魏建君, 杨刘琨, 等. 粒径和浓度对 YAG : Ce 荧光膜复合材料及 pc-WLED 发光性能的影响[J]. *光子学报*, 2018, **47**(9): 0916002