

文章编号: 1000-7032(2009)06-0782-05

YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉的粒度与 LED 匹配性张瑞西<sup>1</sup>, 王海波<sup>2\*</sup>, 林海凤<sup>1</sup>, 谢 晔<sup>1</sup>

(1. 南京工业大学 材料科学与工程学院, 江苏 南京 210009; 2. 南京工业大学 电光源材料研究所, 江苏 南京 210015)

**摘要:** 研究了不同粒度的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉对 LED 亮度的影响, 结果显示: 粒度越大, 封装后 LED 亮度越高; 造成这种结果的主要原因是发光粉颗粒的晶格完整性不同。计算了发光粉在硅胶中的沉降速度, 数据说明粒度越大, 沉降速度越快, 也就越不利于点胶。综合以上两个方面的结果认为发光粉的颗粒不宜太粗或太细, 而且分布应该尽可能的窄, 10 ~ 20 μm 是粒径的理想范围。

**关键词:** 发光二极管; YAG: Ce<sup>3+</sup>; 粒度; 匹配性

中图分类号: O482.31

PACS: 78.55.Hz

PACC: 7855

文献标识码: A

## 1 引 言

近年来, 随着 LED 的迅速发展, 它正在以新型固体光源的角色从传统的显示领域逐步向照明领域进军。与传统光源相比, 半导体光源有节能、高效、体积小、寿命长、响应速度快、驱动电压低、抗震动等优点。随着其价格的不断降低, 发光亮度的不断提高, 半导体光源在照明领域中展现了广泛的应用前景。

白光 LED 的核心技术是利用半导体的 p-n 结发光。目前, 实现白光主要三种方法: 一是发光粉转换法, 用 GaN 蓝光芯片激发 YAG: Ce<sup>3+</sup> 黄色发光粉实现白光是目前应用最多的方法; 二是多基色芯片组合法, 如用红、绿、蓝三基色 LED 芯片组合生成白光; 三是多量子阱法, 在 ZnSe 单晶基片上形成发蓝光的 (Zn, Cd) Se 薄膜, 工作时, (Zn, Cd) Se 薄膜发射蓝光, 同时部分蓝光被 ZnSe 基片吸收, 激发基片发射出宽带黄光, 混合后形成白光, 这种方法较为简单, 但是还不成熟, 有很多缺点<sup>[1,2]</sup>。在目前占主导地位的 GaN 芯片 + YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉技术中, 人们为了提高 LED 的光效及寿命, 在发光粉<sup>[2~8]</sup>、芯片及封装散热<sup>[9~13]</sup> 等方面投入了大量的精力, 但是涉及发光粉与芯片的匹配性方面的工作很少有人进行, 尤其是发光粉

不同的粒度、激发波长、发射波长如何与芯片匹配才能得到最佳结果, 尚未见到公开报道, 各 LED 生产厂家也没有这方面系统研究的报道。本文就不同粒度发光粉对封装后发光强度的影响进行了研究, 得到了一些对实际应用有益的结果。

## 2 实 验

本实验选取了两种方法制备的 5 份发光粉, 其中 1<sup>#</sup> ~ 3<sup>#</sup> 为直接还原法, 4<sup>#</sup> 和 5<sup>#</sup> 为二次还原法, 经过粉碎分级, 获得了不同粒度的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 样品。对发光粉测试的指标有: 平均粒度、粒度分布、激发光谱、发射光谱和发光色坐标等。

表 1 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉的技术参数

Table 1 Technical parameters of YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphor

编号	$D_{50}/\mu\text{m}$	$D_{90}/\mu\text{m}$	$D_{10}/\mu\text{m}$	$\lambda_{\text{ex}}/\text{nm}$	$\lambda_{\text{em}}/\text{nm}$	色坐标(x, y)
1 <sup>#</sup>	40.48	66.77	24.85	462	555	0.444 1, 0.537 8
2 <sup>#</sup>	33.02	61.58	4.36	462	556	0.446 5, 0.535 1
3 <sup>#</sup>	6.71	15.33	2.32	462	559	0.448 2, 0.537 4
4 <sup>#</sup>	36.26	57.69	22.93	462	553	0.434 3, 0.545 7
5 <sup>#</sup>	10.61	33.40	3.47	462	560	0.438 4, 0.546 0

## 3 结果与讨论

## 3.1 不同粒度的发光粉对 LED 光效的影响

LED 封装技术与方法、粘结剂种类与用量、

收稿日期: 2009-02-25; 修订日期: 2009-06-24

基金项目: 江苏省无机及其复合新材料重点实验室开发研究课题(wjjqfhxc1200605); 江苏省科技创新与成果转化专项基金(BA2008049)资助项目

作者简介: 张瑞西(1982-), 男, 江苏东海人, 主要从事稀土发光材料及应用的研究。

E-mail: zhangruixi320@sina.com

\*: 通讯联系人; E-mail: wanghaibo88@163.com, Tel: (025)58805619

芯片规格等对封装后 LED 的光效、色坐标、色温等都有重要的影响。目前大功率 LED 是发展的主流方向,随着散热问题的逐步解决,LED 的功率也越来越大。

本实验选用国产大功率芯片,其功率为 1.15 W,发射波长为 460.0 ~ 462.5 nm;按照贴片式封装方法进行手工封装。实验结果如表 2。

表 2 YAG: Ce<sup>3+</sup> 封装测试结果

Table 2 Packaging test results of YAG: Ce<sup>3+</sup>

编号	光效 (lm · W <sup>-1</sup> )	色坐标 (x, y)	色温/K
1 <sup>#</sup>	77.1	0.394 4, 0.472 3	4 214
2 <sup>#</sup>	69.3	0.416 4, 0.512 9	3 900
3 <sup>#</sup>	52.6	0.445 3, 0.529 0	3 651
4 <sup>#</sup>	74.9	0.359 0, 0.429 3	4 821
5 <sup>#</sup>	59	0.411 6, 0.503 7	4 044

封装结果显示,不论 YAG: Ce<sup>3+</sup> 制备方法如何,LED 的光效与粒度变化是一致的,即随着 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉粒度的降低,封装后 LED 的光效也随之降低。对于直接还原法制备的 YAG: Ce<sup>3+</sup>,当  $D_{50}$  从 40.48  $\mu\text{m}$  降到 6.71  $\mu\text{m}$  时,光效从 77.1  $\text{lm} \cdot \text{W}^{-1}$  下降到了 52.6  $\text{lm} \cdot \text{W}^{-1}$ ,降低了 31.8%。对于二次还原法制备的 YAG: Ce<sup>3+</sup>,随着其  $D_{50}$  从 36.26  $\mu\text{m}$  减小到 10.61  $\mu\text{m}$ ,光效也降低了 21.2%。由上述结果可见,粒度的大小对光效的影响是十分明显的。粒度越大则亮度越高,粒度越小则亮度越低。同时实验结果也说明,粒度分布窄的粉对封装是有利的,因为粒度分布的宽窄与发光粉中较粗或较细粉末所占比重是一一对应的。值得注意的是,本实验中色温也随着粒度的下降而下降,这需要进一步研究以证实色温与粒度是否存在关联。

### 3.2 不同粒度发光粉 XRD 结果

一般认为发光粉的发光强度与其结晶的完整性、表面缺陷多少是紧密相联的,结晶越完整,缺陷越少则亮度越高。而球磨等粉碎工艺会影响发光粉晶格的完整性,增加表面缺陷,从而影响其发光亮度<sup>[1]</sup>。根据上述原理,颗粒较大的发光粉亮度较高是因为其晶格完整性好,表面缺陷少。

图 1 是 1<sup>#</sup> ~ 3<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉 X 射线衍射图谱。从图中可以看出,三种样品衍射峰的数目和位置都是相同的,只是衍射强度有所差别。影响 XRD 强度的因素很多,其中很重要的一方面就

是晶粒的表面状态:一般颗粒越细,其表面积就越大,表面层结构的缺陷也就比较严重,而结构缺陷将导致衍射强度降低和衍射峰宽化。因此,1<sup>#</sup> 样品由于其粒度较大,表面缺陷较少,所以衍射峰几乎无宽化现象;2<sup>#</sup> 样品的粒度和 1<sup>#</sup> 相差较小,所以衍射峰的宽度和高度与 1<sup>#</sup> 相比变化不大;3<sup>#</sup> 样品的粒度与以上二者相比相差较大,其表面缺陷较多,因此其衍射强度最低而且宽化明显。

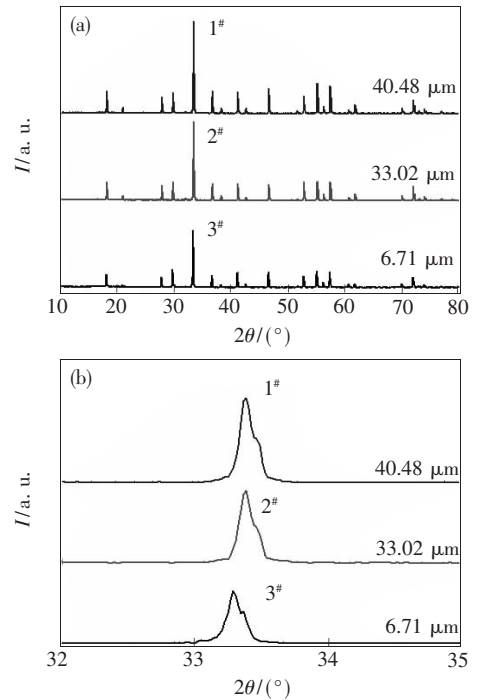


图 1 不同粒度 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉 XRD 图:(a)完整图;(b)局部图

Fig. 1 The XRD patterns of YAG: Ce<sup>3+</sup> with different particle sizes, (a) the whole; (b) the local.

另一方面,由散射引起的光的损失对外观亮度也有重要的影响,而影响散射程度的因素主要有两个,分别是粉体颗粒的大小和照射光的波长。在 LED 中,发光粉颗粒越小,则散射能力越强,而自身被激发的效率也就越低,LED 的亮度也就越低;激发光的波长越短,也就越容易被散射,发光粉吸收的光也就越少,激发效率同样越低,结果 LED 的亮度越低。本封装实验中,在激发波长 (462 nm) 一定的情况下,发光粉颗粒的大小就成了影响散射的唯一因素。从表 1 中,我们看到 3<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 样品的  $D_{10}$  最小,为 2.32  $\mu\text{m}$ ,1<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 样品的  $D_{10}$  最大,为 24.85  $\mu\text{m}$ ,约为前者的 11 倍;1<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 样品  $D_{50}$  约为 3<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 样

品  $D_{50}$  的 6 倍, 同样差别很大, 所以激发光对 1<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 样品的激发效率较高, 而对 3<sup>#</sup> YAG: Ce<sup>3+</sup> 样品的激发效率较低。结果, 封装时采用粒度大的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉, LED 的亮度高; 反之, 荧光粉的粒度小, LED 的亮度低。

### 3.3 不同粒度的发光粉对沉降速度的影响

在用不同粒度的发光粉进行配胶、点胶的实验过程中, 我们也观察到一些值得注意的现象。对于颗粒较大的发光粉, 点胶时发光粉沉降太快, 结果造成各个芯片上粉量不均, 最终的 LED 成品光效、色温、色坐标等性能参数不一致。

根据固体在液体中的沉降速度公式<sup>[14]</sup>

$$\mu_t = \sqrt{\frac{4gd_p(\rho_p - \rho)}{3\zeta\rho}} \quad (1)$$

式中  $u_t$  为沉降速度 (m/s);  $d_p$  为颗粒直径 (m);  $\rho_p$  为颗粒的密度 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ );  $\rho$  为流体的密度 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ );  $g$  为自由落体加速度 ( $\text{m}/\text{s}^2$ );  $\zeta$  阻力系数为

$$\zeta = \phi(Re) = \phi(d_p u \rho / \mu) \quad (2)$$

考虑到发光粉颗粒形貌、粒度不一, 根据统计学原理, 我们在此假设所有发光粉全部为直径相同的球形, 则  $D_{50}$  就是其直径, 由于粉末颗粒较小, 可以认为发光粉在硅胶中的沉降完全处于层流区, 此时  $Re < 2$ , 由以上两式可得:

$$\mu_t = \frac{gd_p^2(\rho_p - \rho)}{18\mu} \quad (3)$$

式中  $\mu$  为流体粘度 ( $\text{Pa} \cdot \text{s}$ )。

YAG: Ce<sup>3+</sup> 的密度在  $4.3 \sim 4.65 \text{ g}/\text{cm}^3$  之间, 本实验中取其平均值  $4.475 \text{ g}/\text{cm}^3$  进行计算, 硅胶的粘度为  $3.8 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 。对于不同粒径的发光粉, 计算得到相应的沉降速度结果如表 3。

实验中根据配胶选用容器的不同, 配胶深度也不同, 但是一般不超过 1 cm, 假设实验中配胶深度都是 1 cm, 根据上述结果, 我们可以得到它

表 3 不同粒度的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 的沉降速度

Table 3 The settling velocity of YAG: Ce<sup>3+</sup> with different particle size

编号	$D_{50}/\mu\text{m}$	沉降速度 $u(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$
1 <sup>#</sup>	40.48	$8\ 088 \times 10^{-7}$
2 <sup>#</sup>	33.02	$5\ 382 \times 10^{-7}$
3 <sup>#</sup>	6.71	$222 \times 10^{-7}$
4 <sup>#</sup>	36.26	$6\ 490 \times 10^{-7}$
5 <sup>#</sup>	10.61	$556 \times 10^{-7}$

们从表面沉降到容器底部的沉降时间如表 4 所列。

由表 4 可见, 粒度最大的 1<sup>#</sup> 发光粉, 在 12.36 s 内就从表层完全沉降到容器底部; 而粒度最小的 3<sup>#</sup> 发光粉则需要 450 s 才能完全沉降下来。由此可见, 封装时并非发光粉粒度越大越好, 而需要综合考虑封装性能, 工艺方便性等因素。

表 4 不同粒度的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 的沉降时间

Table 4 The settling time of YAG: Ce<sup>3+</sup> with different particle size

编号	1 <sup>#</sup>	2 <sup>#</sup>	3 <sup>#</sup>	4 <sup>#</sup>	5 <sup>#</sup>
时间/s	12.36	15.58	450.45	15.4	179.85

图 2 为采用以上型号硅胶时, 发光粉粒度与沉降时间的关系 (配胶深度为 1 cm), 图中显示, 粒度较小时, 发光粉沉降十分缓慢, 随着其粒度的逐渐增大, 沉降越来越快,  $D_{50}$  为  $40 \mu\text{m}$  时, 只需要 12.66 s 就完全沉降下来。

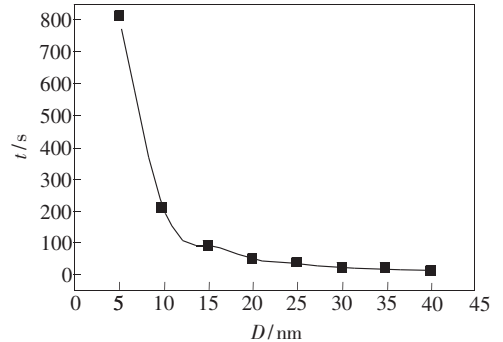


图 2 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉粒度与沉降时间的关系

Fig. 2 The relationship between different particle sizes of YAG: Ce<sup>3+</sup> and settling times

## 4 结 论

研究了不同粒径的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉对封装后 LED 光效的影响, 结果显示粒度越大, LED 的亮度就越高; 原因主要有两方面: 一是发光粉的晶格被破坏的程度不同, 二是不同粒度对激发光的散射能力不同。计算了不同粒度在硅胶中的沉降速度, 计算结果显示粒度越大的发光粉沉降越快, 也就越不利于点胶。综合考虑 LED 的亮度与点胶操作的方便性, 我们认为实际应用的 YAG: Ce<sup>3+</sup> 发光粉粒度不宜过粗或过细, 而且粒度分布应尽可能的窄, 具体根据生产设备及下游客户需求而定。

## 参 考 文 献:

- [ 1 ] Xu Xurong, Su Mianzeng. *The Luminescence and the Luminescent Material* [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2004, 321-330 (in Chinese).
- [ 2 ] Liu Qi, Li Wanwan, Sun Kang. Progress in research on white light emitting diode and Its phosphors [J]. *Materials Review* (材料导报), 2007, **21**(8):116-120 (in Chinese).
- [ 3 ] Qi Faxin, Wang Haibo, Zhu Xianzhong. Spherical YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphor particle prepared by spray pyrolysis [J]. *J. Rare Earth*, 2005, **23**(4):397-400.
- [ 4 ] Kong Li, Gan Shucui, Hong Guangyan, *et al.* Effects of doping lanthanide ions in YAG: Ce system on the spectral properties of Ce<sup>3+</sup> [J]. *Chem. J. Chin. University* (高等学校化学学报), 2008, **29**(4):673-676 (in Chinese).
- [ 5 ] Yang Heesun, Kim Yong-Seog. Energy transfer-based spectral properties of Tb-, Pr-, or Sm-codoped YAG: Ce nanocrystalline phosphors [J]. *J. Lumin.*, 2008, **128**(10):1570-1576.
- [ 6 ] Liu Xingren. Phosphors for white LED solid state lighting [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2007, **28**(3):291-301 (in Chinese).
- [ 7 ] Huang Xian, Wang Jian, Wu Qing, *et al.* The luminescent enhancement due to charge compensate effects in YAG: Ce phosphor used for white-light-emitting-diodes [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2007, **28**(6):869-874 (in Chinese).
- [ 8 ] Li Huijuan, Shao Qiyue, Dong Yan, *et al.* The thermal quenching of YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphors for white LED application [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2008, **29**(6):984-988 (in Chinese).
- [ 9 ] Chen Mingxiang, Luo Xiaobing, Ma Zetao. Advanced in packaging design and research on high-power white LED [J]. *Semiconductor Optoelectronics* (半导体光电), 2006, **27**(6):653-658 (in Chinese).
- [ 10 ] Cheng Qian. Thermal management of high-powder white LED package [J]. *Electronics Process Technology* (电子工艺技术), 2007, **28**(6):311-315 (in Chinese).
- [ 11 ] Su Da, Wang Demiao. Technical research on heat-release package of high powder LED [J]. *China Illuminating Engineering Journal* (照明工程学报), 2007, **18**(2):69-72 (in Chinese).
- [ 12 ] Guan Ming, Dong Huining, Tang Zhengwei, *et al.* Flip-chip packaging technology for high power white light LED [J]. *J. Chongqing University of Posts and Telecommunications* (Natural Science)(重庆邮电大学学报 自然科学版), 2007, **19**(6):681-683 (in Chinese).
- [ 13 ] Qian Yuanke, Hu fei, Wu Huiying, *et al.* Packaging technique of high-powder white LED [J]. *Semiconductor Optoelectronics* (半导体光电), 2005, **26**(2):118-120 (in Chinese).
- [ 14 ] Wang Zhikui. *Chemical Engineering Principle* [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2005, 98-102 (in Chinese).

## The Dependence of LED Emissive Intensity on YAG: Ce<sup>3+</sup> Phosphor Particle Sizes

ZHANG Rui-xi<sup>1</sup>, WANG Hai-bo<sup>2</sup>, LIN Hai-feng<sup>1</sup>, XIE Ye<sup>1</sup>

(1. College of Materials Science and Engineering, Nanjing University of Technology, Nanjing 21009, China;

2. The Research Institute of Electric light Source Materials of NJUT, Nanjing 210015, China)

**Abstract:** In the article, effect of different particle sizes of YAG: Ce<sup>3+</sup> phosphor on LED brightness and its reasons were studied. The results showed that the larger the particle sizes is, the higher the brightness is, which is attributed to the integrity of crystal lattice of the phosphor particle. The settling rate of YAG: Ce<sup>3+</sup> particles in silica was calculated in detail and analyzed deeply, indicating that the larger particle sizes make the settling velocity to be faster, and also the more difficult dispensing in packaging. Taking into account of

the comprehensive consideration of particle size and brightness, we concluded that the particle size should not be too large or too small in order to obtain white LED with more brightness, and the distribution range of the particle size should be narrow as much as possible, 10 ~ 20  $\mu\text{m}$  distribution may be the best.

**Key words:** LED; YAG:  $\text{Ce}^{3+}$ ; particle size; matching ability

**CLC number:** O482.31

**PACS:** 78.55.Hz

**PACC:** 7855

**Document code:** A

Received date: 2009-02-25

## 欢迎订阅 欢迎投稿 《光学 精密工程》(月刊)

《光学 精密工程》是中国仪器仪表学会一级学术期刊,中国科学院长春光学精密机械与物理研究所主办,科学出版社出版。由国内外著名科学家任顾问,陈星旦院士任编委会主任,国家科技部副部长曹健林博士担任主编。

《光学 精密工程》坚持学术品位,集中报道国内外现代应用光学、光学工程技术、光电工程和精密机械、光学材料、微纳科学与技术、医用光学、先进加工制造技术、信息与控制、计算机应用以及有关交叉学科等方面的最新理论研究、科研成果和新技术。本刊自 2007 年起只刊发国家重大科技项目和国家自然科学基金项目及各省、部委基金项目资助的论文。《光学 精密工程》竭诚欢迎广大作者踊跃投稿。

### 本刊获奖:

中国精品科技期刊  
中国科学技术协会择优支持期刊  
中国百种杰出学术期刊  
第一届北方优秀期刊  
吉林省双十佳期刊

### 国际检索源:

《美国工程索引》(EI Compendex)  
《美国化学文摘》(CA)  
《英国 INSPEC》(SA)  
《俄罗斯文摘杂志》(PJK)  
《美国剑桥科学文摘》(CSA)

### 国内检索源:

中国科技论文统计源期刊  
中国学术期刊(光盘版)  
万方数据系统数字化期刊网  
台湾华艺中文电子期刊网  
中国科学引文数据库  
中国物理文献数据库  
中国期刊网  
中文核心期刊要目总览(北大)  
中国学术期刊综合评价数据库  
中国光学与应用光学文摘  
中国科学期刊全文数据库  
中国光学文献数据库  
中国学术期刊文摘  
中国物理文摘

地 址:长春市东南湖大路 3888 号

《光学 精密工程》编辑部

邮 编:130033

电 话:(0431)86176855

传 真:(0431)84613409

E-mail: gxjmgc@ciomp.ac.cn

gxjmgc@sina.com

http://www.oape.net

国内邮发代号: 12-166

国外发行代号: 4803BM

定 价: 50.00 元/期

帐 户: 中国科学院长春光学  
精密机械与物理研究所

银 行: 中行吉林省分行营业部

帐 号: 220801471908091001