

**Д.Н. Хмиль, А.М. Камуз, П.Ф. Олексенко,  
В.Г. Камуз, Н.Г. Алексенко, О.А. Камуз**

## **ВЛИЯНИЕ ТРАНСФОРМАЦИИ ИНДИКАТРИСЫ РАССЕЯНИЯ СВЕТА НА ИЗМЕРЯЕМОЕ ЗНАЧЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ПОГЛОЩЕНИЯ ПЛЕНКИ ФОТОЛЮМИНОФОРНОЙ СУСПЕНЗИИ**

Проанализировано влияние трансформации индикатрисы рассеяния света на коэффициент поглощения (КП) композитной пленки фотолюминофорной суспензии. Экспериментально показано, что при использовании закона Бугера—Ламберта для определения КП пленки мутной среды необходимо учитывать трансформацию индикатрисы рассеяния света. Разработан метод прямого измерения коэффициента поглощения (метод двух толщин) и определены условия, которые необходимо удовлетворять при его использовании.

**Ключевые слова:** белый светодиод, коэффициент поглощения, фотолюминофор, иттрий-алюминиевый гранат.

### **ВВЕДЕНИЕ**

В настоящее время широко применимыми являются светодиодные источники света как в качестве декоративного освещения, так и для замены ламп накаливания. Примерно 50 % рынка сверхъярких светодиодов занимают белые светодиоды. Одним из самых главных компонентов этих источников света является слой многокомпонентной фотолюминофорной суспензии. Подавляющее большинство производителей белых светодиодов используют люминофоры на основе гранатов (иттрий-алюминиевого, галлий-гадолиниевого, тербий-алюминиевого гранатов), легированных церием [1].

Проблема всех фотолюминофорных суспензий белых светодиодов — их быстрая деградация. В связи с этим выдвигаются особые требования к измерению их оптических параметров, в первую очередь, к измерению стабильности коэффициента поглощения композитной пленки суспензии. Кроме того, высокоэффективная фотолюминофорная суспензия должна иметь максимальный коэффициент поглощения излучения синего светодиода (450—460 нм) и максимальную интенсивность фотолюминесценции (540—590 нм).

### **ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ**

Мы не нашли информации о количественном методе вычисления коэффициента поглощения композитной пленки фотолюминофорной суспензии. Как известно из классической оптики, коэффициент поглощения плоскопараллельного пучка света, проходящего через оптически однородную среду (закон Бугера—Ламберта), определяется по изменению силы света. В оптически неоднородной среде (фотолюминофорная суспензия) сила света изменяется не только из-за поглощения, но и из-за рассеяния света микрочастицами среды (точнее, вследствие трансформации индикатрисы рассеяния) [2—4]. Поэтому нам необходимо разработать такой метод измерения коэффициента поглощения, который позволял бы использовать закон Бугера—Ламберта, а также определить условия, которые необходимо выполнять в этом случае.

© Д.Н. Хмиль, А.М. Камуз, П.Ф. Олексенко, В.Г. Камуз, Н.Г. Алексенко, О.А. Камуз, 2011

## ОСНОВНОЙ МАТЕРИАЛ И РЕЗУЛЬТАТЫ

В теории многократного рассеяния Хартеля [3], которая основывается на теории Ми, показано, что интенсивность рассеянного света  $I_p(\theta, l)$  можно выразить произведением общего количества рассеянного света  $Q_k(l)$ , независимого от его углового распределения, на функцию  $f_k(\theta)$ , описывающую это распределение:

$$I_p(\theta, l) = Q_k(l) + f_k(\theta) = \sum_{k=1}^{\infty} \left[ \frac{(\sigma_p N l)^k}{k!} \times \right. \\ \left. \times \exp[-(\sigma_p N + K_a)l] \sum_{n=0}^N \frac{2n+1}{4\pi} \left( \frac{\alpha_n}{2n+1} \right)^k P_n(\cos\theta) \right],$$

где  $\theta$  — приемный угол фотоприемника;  $\sigma_p$  — поперечное сечение рассеяния частицы по теории Ми;  $K_a$  — коэффициент поглощения для частиц с исследуемой концентрацией;  $Nl$  — число рассеивающих частиц на единицу площади в слое толщиной  $l$ ;  $k$  — количество рассеиваний.

Теория Хартеля усовершенствована Тейсингом [4]. Ему удалось отдельно вычислить значения функции  $Q_k(l)$  и функции  $f_k(\theta)$ , которые приведены на рис. 1.

Из рис. 1, а видно, что количества рассеянного света в каждом порядке рассеяния  $k$  зависят от толщины слоя пленки  $l$  ( $\sigma_p$  и  $N$  постоянны) и каждая функция  $Q_k(l)$  имеет максимум, который для каждого порядка рассеяния  $k$  определяется выражением  $\sigma_p N l = k$ . С возрастанием порядка  $k$  (рис. 1, б) сила света, рассеянного вперед, постепенно уменьшается, а форма индикатрисы рассеяния постепенно изменяется (трансформируется) и становится сферической примерно после восьмикратного рассеяния.

Рассмотрим процесс трансформации формы индикатрисы рассеяния более подробно при прохождении света синего светодиода (460 нм) через фотолюминофорную пленку.

Допустим, что на пленку фотолюминофорной суспензии падает квазиплоская волна и ее индикатриса рассеяния на входе в мутную среду

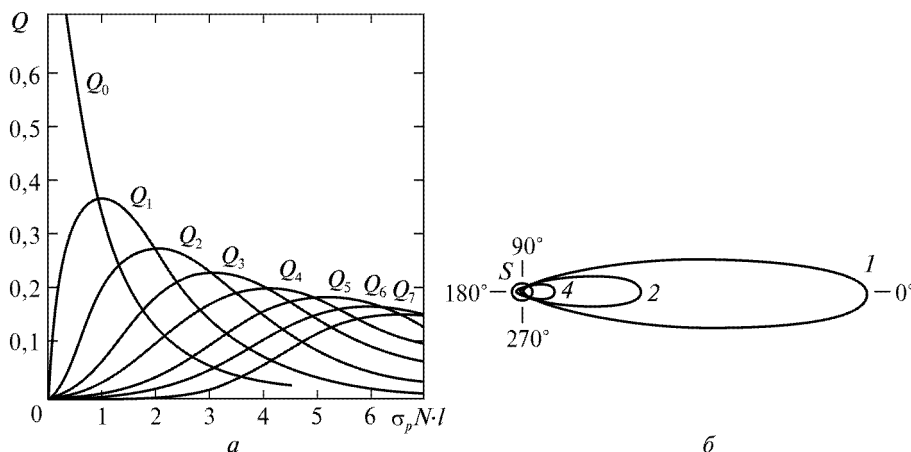


Рис. 1. Зависимость количества света  $Q_k$  по Хартелю ( $k$  — кратно рассеянию в слое) от толщины слоя  $\sigma_p N l$  (а), а также полярная диаграмма углового распределения света, рассеянного 1, 2, 3, 4 и 8 раз (б)

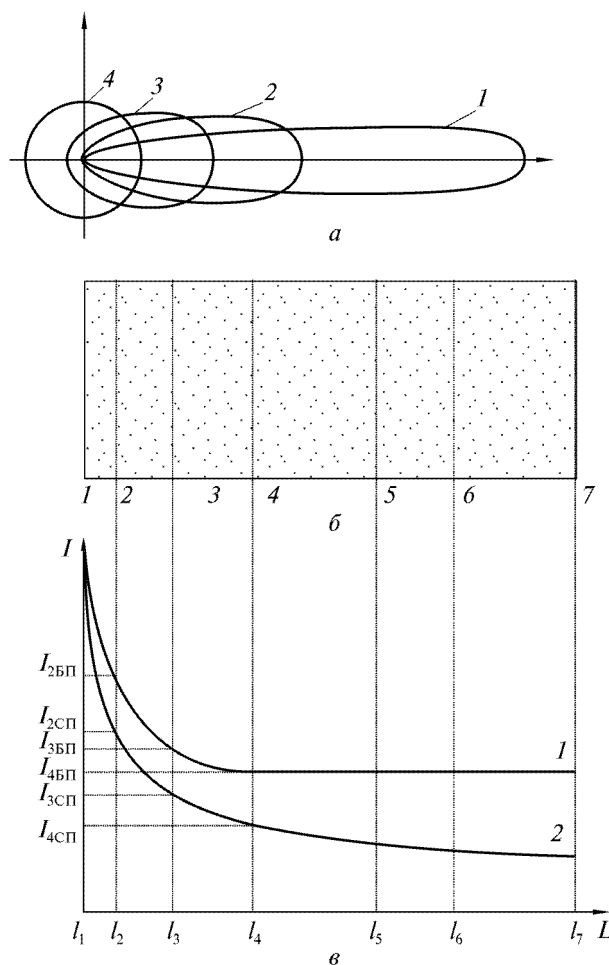


Рис. 2. Трансформация формы индикатрисы рассеивания на участке 1—4 (а), схематический вид пленки фотолуминофорной суспензии, с плоскостями в которых измерялась индикатриса рассеивания и сила света (б), а также зависимость изменения силы света от толщины  $L$  для частиц без поглощения (1) и с поглощением (2) (в)

(рис. 2, а, плоскость 1) имеет форму узкого пика и угловая апертура источника излучения равна угловой апертуре нашего приемного устройства спектро радиометра НААС-2000 ( $\Omega = 0,02391$  ср). Тонкую структуру индикатрисы рассеяния света микро частицами фотолуминофора не учитываем. Сначала рассмотрим случай, когда частицы не поглощают свет, а только рассеивают. Пусть сила света в плоскости 1 равна  $I_1$  (рис. 2, в). На пути от плоскости 1 к плоскости 2 (рис. 2, б) свет многократно рассеивается, что приводит к расширению его индикатрисы рассеяния (см. рис. 2, б) [3, 4] и уменьшению силы света в направлении координатной оси  $L$  до величины  $I_{2БП}$  (рис. 2, в, кривая 1). Индекс БП при силе света означает, что микро частицы не поглощают свет, а только рассеивают его. Вследствии рассеяния света на большие углы сила света  $I_{2БП}$  будет иметь меньшее значение, чем сила света  $I$ .

На пути от плоскости 2 к плоскости 3 форма индикатрисы рассеяния света продолжает изменяться (трансформироваться), и в плоскости 3 она становится почти сферической (рис. 2, а, индикатриса 3), а сила света в направлении оси  $L$  уменьшается до  $I_{3БП}$  (рис. 2, в, кривая 1). В плоскости 4 индикатриса рассеяния света приобретает сферическую форму, а сила света  $I_{4БП}$  имеет одинаковые значения в любом направлении в пределах телесного угла  $4\pi$  (рис. 2, а, индикатриса 4 и рис. 2, в — кривая 1). Слой пленки (от плоскости 1 до плоскости 4), в котором происходит трансформация формы индикатрисы рассеяния света, называется *слоем трансформации*. Толщину этого слоя обозначим  $l_{тр}$ . Этот

параметр пленки зависит от концентрации порошка люминофора в пленке, толщины, показателей преломления частиц порошка и биндера.

Поскольку в плоскостях 5, 6 и т.д. индикатрисы рассеяния света тоже будут иметь сферические формы, а частицы не поглощают свет, то сила света в направлении оси  $L$  в этих плоскостях будет иметь постоянное значение равное  $I_{5БП} = I_{6БП} = I_{7БП} = I_{4БП}$  (рис. 2, в, полочка на кривой  $I$ ). Таким образом, из-за трансформации формы индикатрисы рассеяния сила света в направлении оси  $L$  уменьшается в слое трансформации (см. рис. 2, б, участки 1–4) даже при отсутствии поглощения света частицами люминофора (рис. 2, в, убывающая часть кривой  $I$ ).

Полагаем, что относительное элементарное изменение силы света  $\frac{dI_l}{I_l}$  в направлении оси  $L$  в каждом элементарном слое  $dl$  пленки не зависит от интенсивности света и пропорционально только толщине элементарного слоя, т.е.

$$\frac{dI_l}{I_l} = -K_{\text{тр}} dl,$$

где  $K_{\text{тр}}$  — коэффициент пропорциональности.

Полное изменение силы света (в направлении оси  $L$ ) в слое трансформации найдем после интегрирования левой и правой частей, соответственно от  $I_{0l}$  до  $I_l$  и от 0 до  $l$  ( $0 < l \leq l_4$ ):

$$\int_{I_{0l}}^{I_l} \frac{dI_l}{I_l} = - \int_0^l K_{\text{тр}} dl.$$

В результате получим

$$\ln\left(\frac{dI_l}{I_l}\right) = \ln(-K_{\text{тр}}l),$$

или

$$I_l = I_{0l} e^{-K_{\text{тр}}l}.$$

Изменение формы индикатрисы рассеяния происходит только в слое трансформации (от  $l = 0$  до  $l = l_4$ ). Параметр слоя трансформации, который обуславливает скорость изменения силы света в направлении оси  $L$ , — коэффициент трансформации формы индикатрисы рассеяния  $K_{\text{тр}}$ .

Если частицы люминофора поглощают свет, то сила света в слое трансформации (рис. 2, б, участок пленки 1–4) будет уменьшаться как из-за трансформации индикатрисы рассеяния, так и из-за поглощения, а на участке пленки 4–7 только поглощения (рис. 2, в). Сила света в плоскостях 2–7 будет иметь соответственно значения  $I_{2СП}$ ,  $I_{3СП}$ ,  $I_{4СП}$ ,  $I_{5СП}$ ,  $I_{6СП}$  и  $I_{7СП}$  (индексы «СП» при силе света  $I$  означают, что частицы люминофора имеют поглощение).

Закон Бугера—Ламберта для участков пленки 1–4 и 4–7 (рис. 2, в, кривая 2) будет иметь вид  $I_{l(1-4)} = I_{0l} e^{-(K_{\text{тр}}+K_a)l}$  и  $I_{l(4-7)} = I_{0l} e^{-K_{\text{тр}}l_4} \cdot e^{-K_a l}$ , где  $I_{0l}$  — сила света на входе в пленку;  $I_{l(1-4)}$  — сила света на участке пленки 1–4;  $I_{l(4-7)}$  — сила света на участке 4–7;  $l_4$  — координата конца слоя трансформации;  $K_{\text{тр}}$  — коэффициент трансформации формы индикатрисы рассеяния;  $K_a$  — коэффициент поглощения пленки фотолуминофорной суспензии.

**Измерение коэффициента поглощения пленки фотолуминофорной суспензии.** Используя уравнения Бугера—Ламберта, выражения для силы света в плоскостях 5 и 7 можно записать соответственно так:

$$I_{15} = I_0 e^{-K_{\text{тр}}/4} e^{-K_a/5} \text{ и } I_{17} = I_0 e^{-K_{\text{тр}}/4} e^{-K_a/7}.$$

Разделив  $I_{15}$  на  $I_{17}$ , получим

$$\frac{I_{15}}{I_{17}} = \frac{I_0 e^{-K_{\text{тр}}/4} e^{-K_a/5}}{I_0 e^{-K_{\text{тр}}/4} e^{-K_a/7}} = \frac{e^{-K_a/5}}{e^{-K_a/7}} = e^{-K_a(15-17)}.$$

Отсюда выражаем коэффициент поглощения  $K_a = \frac{\ln \frac{I_{15}}{I_{17}}}{(17-15)}$ .

Для определения коэффициента поглощения фотолуминофорной пленки необходимо использовать две пленки с разными толщинами, которые больше толщины слоя трансформации. Поэтому этот метод мы назвали «метод двух толщин».

Для реализации нового метода были изготовлены тестовые образцы композитных пленок фотолуминофорной суспензии разной толщины. В состав которых входили: эпоксидная смола, люминофор ФЛЖ-7, тиксотропное вещество, стимулятор обработки. В качестве источника возбуждения использовался синий светодиод с максимумом на длине волны 456 нм.

На рис. 3 приведены результаты измерений тестовых образцов, с помощью которых были вычислены спектры коэффициентов поглощения с использованием «метода двух толщин» (кривые 6–7) и закона Бугера—Ламберта (кривые 1–5).

Из рисунка можно сделать вывод, что в случае применения закона Бугера—Ламберта (выведенного для параллельного пучка и оптически однородной среды) полученные результаты недостоверны как по значению коэффициента поглощения, так и по форме спектра коэффициентов поглощения. Так, при использовании образца толщиной 120 мкм график (рис. 3, кривая 1) отображает уменьшение силы света в основном из-за трансформации индикатрисы рассеяния. С увеличением толщины образца влияние трансформации индикатрисы рассеяния постепенно уменьшается, а вклад поглощения фотолуминофора возрастает (рис. 3: 2 — 205, 3 — 305, 4 — 420, 5 — 520 мкм).

При применении «метода двух толщин» (толщины образцов больше толщины трансформации) график демонстрирует спектр коэффициентов поглощения (рис. 3: 6 — 420–520, 7 — 420–585 мкм). Точность этого нового метода, как и для закона Бугера—Ламберта, определяется точностью измерения толщины образцов и влиянием фотолюминесценции, которая повышает значение коэффициента поглощения с увеличением

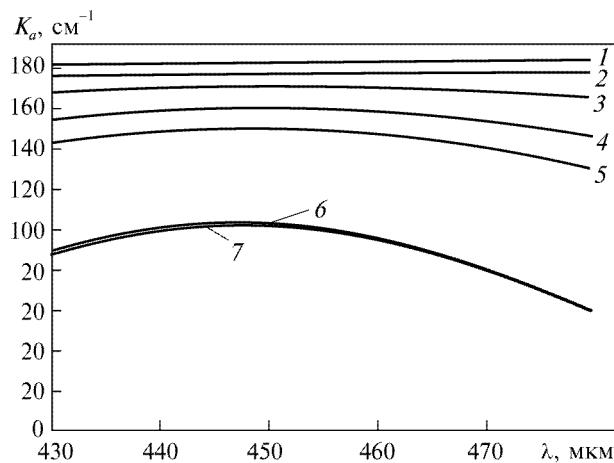


Рис. 3. Зависимости коэффициентов поглощения, определенных по закону Бугера—Ламберта (1–5) и с использованием «метода двух толщин» (6–7), от длины волны

толщины образца. Поэтому между кривыми 6 и 7 и наблюдается различие. В целях улучшения результатов необходимо использовать больше данных для усреднения, а также источник синего света, спектральная полуширина которого меньше стоксового сдвига фотолюминофора.

Применяя «метод двух толщин», можно вычислить коэффициент поглощения композитной пленки фотолюминофорной суспензии, с помощью которого можно определить коэффициент трансформации и толщину слоя трансформации.

**Измерение толщины слоя трансформации пленки фотолюминофорной суспензии.** Для измерений изготавливаются несколько пленок с разными толщинами. Для каждого измерения  $K_a$  используются две пленки: первая с толщиной, заведомо большей толщины трансформации, а в качестве второй пленки пары поочередно применяются все остальные пленки. В результате измерений имеем ряд значений  $K_{a1}, K_{a2}, K_{a3}, K_{a4}, \dots, K_{am}$ . Если  $K_{a1} = K_{a2} = K_{a3} = K_{a4}$ , то понятно, что толщина слоя трансформации меньше толщины образцов. Если же  $K_{a1} = K_{a2} = K_{a3} = K_{a4} > K_{an}$ , то толщина слоя трансформации больше толщины образца, на котором получено значение  $K_{an}$ . Толщину этой  $n$ -й пленки  $l_n$  можно принимать за толщину слоя трансформации, т.е.  $l_n \cong l_{тр}$ . Для повышения точности измерений толщины слоя трансформации необходимо дополнительно изготовить достаточное количество пленок с толщинами, немного превышающими толщины  $n$ -й пленки.

**Измерение коэффициента трансформации индикатрисы рассеяния света пленки фотолюминофорной суспензии.** Для измерений изготавливается одна пленка толщиной, меньшей толщины слоя трансформации, например толщиной  $l$  ( $l < l_{тр}$ ). Используя уравнения Бугера—Ламберта, можно записать выражение для значения силы света для пленки толщиной  $l$ :

$$I_l = I_0 e^{-(K_{тр} + K_a)l}.$$

С помощью этой формулы и соотношения для коэффициента поглощения  $K_a$  можно легко вычислить толщину трансформации, т.е.

$$K_{тр} = \frac{\ln\left(\frac{I_l}{I_0}\right)}{l} - K_a.$$

## ВЫВОДЫ

- В работе рассмотрено влияние трансформации индикатрисы рассеяния света на измеряемые значения коэффициента поглощения композитной пленки фотолюминофорной суспензии.

- Экспериментально показано, что при использовании закона Бугера—Ламберта для определения коэффициента поглощения пленки мутной среды необходимо учитывать трансформацию индикатрисы рассеяния света.

- Предложен новый метод вычисления коэффициента поглощения композитной пленки фотолюминофорной суспензии (метод двух толщин). Определены условия, которые необходимо выполнять при использовании нового метода (пленки должны иметь толщины большие, чем толщина трансформации).

- Определение коэффициента поглощения композитной пленки фотолюминофорной суспензии является частью комплекса методов, которые позволяют определить пригодность использования фотолюминофоров для изготовления на их основе белых светодиодов.

**D.N. Khmil, A.M. Kamuz, P.Ph. Oleksenko,  
V.G. Kamuz, N.G. Aleksenko, O.A. Kamuz**

**INFLUENCE OF TRANSFORMATION  
OF THE LIGHT SCATTERING INDICATRIX ON MEASURED VALUES  
OF THE ABSORPTION COEFFICIENT  
OF THE PHOSPHOR SLURRY FILM**

The effect of the transformation of the light scattering indicatrix on the magnitude of the absorption coefficient (AC) of phosphor slurry composite film has been analyzed. It is shown experimentally that when using the Bouguer—Lambert law for determining the AC film of turbid medium it is necessary to take into consideration the transformation of the light scattering indicatrix. A method for direct measurement of the absorption coefficient (the method of two thicknesses) has been developed, and the conditions, which are necessary while using this method, have been determined.

**Keywords:** white light-emitting diode, absorption coefficient, photoluminophor, yttrium-aluminum garnet.

1. *Светодиоды «теплого» белого свечения на основе  $p-n$ -гетероструктур типа InGaN/AlGaIn/GaN, покрытых люминофорами из иттрий-гадолиниевых гранатов* / Н.П. Сошин, Н.А. Гальчина, Л.М. Коган, С.С. Широков, А.Э. Юнович // ФТП. — 2009. — **43**, вып. 5. — С. 700—704.
2. *Исимару А.* Распространение и рассеяние волн в случайно-неоднородных средах. — М.: Мир, 1981. — **2**. — С. 20—26.
3. *Джеймс Т.Х.* Теория фотографического процесса. — Л.: Химия, 1980. — С. 565—570.
4. *Macrodistribution of light scattered by dispersions of spherical dielectric particles* / Н.Н. Theissing // JOSA. — 1950. — **40**, Iss. 4. — P. 232—242.

Институт физики полупроводников  
им. В.Е. Лашкарева  
НАН Украины  
Проспект Науки, 45  
03028 Киев

Получено 08.04.2011