

基于Lambert-Beer理论与人工神经网络的混合荧光粉发射光谱预测

Cao, Yixing; Chen, Shanghuan; Li, Yutong; Du, Yunjia; Chen, Wei; Fan, Jiajie; Zhang, Guoqi

Publication date

2021

Document Version

Final published version

Published in

Xiyou Jinshu Cailiao Yu Gongcheng/Rare Metal Materials and Engineering

Citation (APA)

Cao, Y., Chen, S., Li, Y., Du, Y., Chen, W., Fan, J., & Zhang, G. (2021). 基于Lambert-Beer理论与人工神经网络的混合荧光粉发射光谱预测. *Xiyou Jinshu Cailiao Yu Gongcheng/Rare Metal Materials and Engineering*, 50(7), 2393-2398.

Important note

To cite this publication, please use the final published version (if applicable).
Please check the document version above.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download, forward or distribute the text or part of it, without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license such as Creative Commons.

Takedown policy

Please contact us and provide details if you believe this document breaches copyrights.
We will remove access to the work immediately and investigate your claim.

基于 Lambert-Beer 理论与人工神经网络的 混合荧光粉发射光谱预测

曹逸兴¹, 陈尚欢², 李宇彤², 杜运佳², 陈威⁴, 樊嘉杰^{1,3,4}, 张国旗^{1,3}

(1. 复旦大学 工程与应用技术研究院 超越照明研究所, 上海 200433)

(2. 河海大学 机电工程学院, 江苏 常州 213022)

(3. 代尔夫特理工大学 微电子工程系, 荷兰 代尔夫特 2528)

(4. 常州市半导体照明应用技术研究院 半导体照明联合创新国家重点实验室, 江苏 常州 213161)

摘要: 针对由钇铝石榴石基、硅基氮氧化物和氮化物混合制备的三元高显色荧光粉体系, 采用修正 Lambert-Beer 模型结合 BP (back propagation, BP) 人工神经网络的方法实现了任意比例混合荧光粉体系的发射光谱预测。首先, 通过修正 Lambert-Beer 模型计算出 3 种荧光粉以任意比例混合后的发射光谱比例系数; 其次, 采用 BP 神经网络对比例系数进行训练和预测; 最后, 实现 3 种荧光粉混合后发射光谱的预测并通过实验测量验证。研究结果表明: 比例系数预测值与理论计算值之间的误差可以控制在 5% 以内; 通过 BP 神经网络预测的发射光谱图谱与试验测量图谱符合程度较好, 两者的均方根误差 RMSE 和色度差异 Δxy 较小, 平均值分别为 0.019 和 0.0016。

关键词: 高显色 LED; 混合荧光粉; 发射光谱; Lambert-Beer 理论; 人工神经网络

中图分类号: O482.31

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2021)07-2393-06

新一代发光二极管 (LED) 光源不仅仅面临低成本和高光效的挑战, 更须满足健康、舒适、高光色品质、低频闪、高可靠性等需求。具有高显色指数的全光谱 LED 在室内照明、医疗健康照明、植物照明、特种显示、汽车照明等应用领域的潜力巨大, 是未来照明技术的重要发展方向。传统大功率白光 LED 通常由蓝光 LED 芯片涂敷钇铝石榴石基 (YAG:Ce³⁺) 黄色荧光材料制备而成, 这种工艺简单、发光效率高、可靠性好^[1,2]。然而, YAG:Ce³⁺ 单色荧光粉主要发射黄绿光谱, 基于该技术产生的白光红光成分较少, 最终导致 LED 显色指数较低。

多种荧光粉混合技术替代单一黄色荧光粉方案已被认为是一种提高显色指数有效可行的方案。例如, Yuan^[3] 基于 Lambert-Beer 理论和光线追踪仿真模拟方法, 研究发现了混合荧光粉的发光机理。该方法以绿、橙和红色 3 种混合荧光粉为例, 考虑不同荧光粉配比、单个荧光粉的量子效率和自吸收效应等因素, 通过引入单个发光材料的等效激发和发射光谱, 将这种算法扩展到混合多发光材料系统。通过这种组合, 研究人员能够模拟 LED 芯片级封装的发光特性。Zhang 等人^[4] 利用绿、红、黄 3

种荧光粉混合制备了色温分别为 3000、4000 和 5000 K 的高显指荧光粉/硅胶膜, 通过仿真和实验的手段定性/半定量地研究了其光致发光性能, 并对其热稳定性进行了表征, 发现混合荧光粉体系光学性质和热稳定性均具有非线性特点。

人工神经网络 (ANN) 是 20 世纪 80 年代开始在人工智能方向兴起的研究热点。神经网络是一种运算模型, 由大量的节点 (或称神经元) 之间相互连接构成, 它通常都是对自然界某种算法或者函数的逼近, 也可能是对一种逻辑策略的表达。近年来, 人工神经网络的研究取得了很大的进步, 它在很多领域方面有着较大的应用, 如预测估计、自动控制、模式识别、智能机器人、生物学、医学等^[5-8]。人工神经网络解决了很多当代计算机很难解决的实际问题, 展现出了智能特性^[9,10]。ANN 开始被用于预测 LED 的光、电、热等性能。例如, Chen 等人^[11] 使用 ANN 来估计红色和黄色 LED 混合的 3*2 LED 阵列的色度坐标。预测结果表明: 基于 FRCG (Fletcher-Reeves conjugate gradient) 方法的人工神经网络模型具有良好且稳定的预测能力。Lo 等人^[12] 提出了一种将各种

收稿日期: 2020-08-10

基金项目: 国家自然科学基金 (51805147); 江苏省六大人才高峰项目 (GDZB-017); 江苏省重点研发计划 (产业前瞻与关键核心技术) (BE2019041)

作者简介: 曹逸兴, 男, 1989 年生, 博士生, 复旦大学工程与应用技术研究院超越照明研究所, 上海 200433, E-mail: yixingcao@sina.cn

荧光粉的激发光谱与发射光谱作为输入参数的数学模型，用来预测多种 LED 荧光粉的发射光谱。根据预测数据与试验据进行对比，证明该研究所提出的数学模型可以精确估计基于多种荧光粉混合的 LED 发射光谱。Liu 等人^[13]提出了一种通过 ANN 简化的 LED 光-电-热耦合模型 (photo-electro-thermal, PET)，该模型可以将多物理场问题转化为单个物理场问题以研究耦合关系。结果表明：此方法大大减少 LED 热管理系统的分析时间。近年来，本团队也将机器学习算法相继应用于 LED 故障诊断和可靠性预测^[14]；紫外 LED 寿命预测^[15]；全光谱 LED 的光谱功率分布动态预测^[16]；多失效机理作用的 LED 光谱功率分布退化规律预测^[17]；以及 LED 阵列的光通量预测^[18]等。

面向越来越复杂的 LED 混合荧光粉体系，本研究以钇铝石榴石基、硅基氮氧化物和氮化物 3 种材料为基础混合制备高显色荧光粉，并预测这 3 种荧光粉按照任意比例混合后的发射光谱。首先通过修正 Lambert-Beer 模型计算出 3 种荧光粉以任意比例混合后的发射光谱比例系数，再采用 BP 神经网络对混合发射光谱的比例系数进行预测，最后将 BP 神经网络预测得到的比例系数分别乘上其对应荧光粉的发射光谱并进行求和，实现多种荧光粉混合后的发射光谱预测。

1 光谱预测原理及方法

1.1 修正 Lambert-Beer 理论模型

1.1.1 理论模型介绍

通常，采用 Lambert-Beer 模型可以有效地模拟蓝光激发单一荧光粉发光模式，然而，由于不能模拟荧光材料之间的内吸收机理，该模型在多种荧光粉混合发光体系中应用具有局限性。然而，可以通过引入单个荧光粉等效激发和发射光谱，考虑到单个荧光粉材料的量子效率和多种荧光粉材料之间的自吸收，将 Lambert-Beer 模

型推广到了多种荧光粉混合的发光材料体系中。

Lambert-Beer 理论指出，光被透明介质吸收率 OD 与介质材料的浓度 C 和吸收层厚度 (即光程, L) 以及消光系数 K 有关，因此，光吸收率 OD 可以表示为：

$$OD = \lg \frac{I_0}{I_1} = KCL \quad (1)$$

其中， I_0 和 I_1 分别为初始光功率和最后光功率，若扩展到多波长情况下，公式(1)可以变为：

$$\frac{OD}{L} = KCab(\lambda) \quad (2)$$

其中， $ab(\lambda)$ 为吸收光谱。因此，发光材料的内部转移可以用公式(3)来表示：

$$I_{em} = qI_{ab}em(\lambda) \quad (3)$$

其中， I_{em} , I_{ab} 和 $em(\lambda)$ 分别为发射光谱光功率、吸收光谱光功率和发射光谱，通过公式(2)利用射线追踪算法可以计算出荧光材料吸收的光；通过公式(3)可以得到发射光谱。

对于在多种荧光粉发光材料的体系中，吸收光谱和发射光谱分别表示为波长的函数： $ab_i(\lambda)$ 和 $em_i(\lambda)$ 。各种发光材料比例为 r_i (和为 10)，量子效率为 q_i ，因此，多种荧光粉混合体系的发光特性可以表示为公式(4)：

$$em_{eq}(\lambda) = \sum_{i=1}^{i=n} \sum_{z=380}^{z=780} k_i em(\lambda_z) \quad (4)$$

其中， k_i 为荧光粉 i 的等效转化比例系数，描述了多元发光材料体系中各荧光粉转化发射光谱的强度。 $em(\lambda_z)$ 代表可见光波段不同波长时的发射光谱强度。如图 1 所示， k_i 可以由 3 个部分组成：(1) 荧光粉 i 吸收蓝光；(2) i 型荧光粉吸收 j 型荧光粉发射的光；(3) 荧光粉 j 吸收荧光粉 i 发出的光，因此 k_i 可以表达为：

$$k_i = r_i q_i + r_i \left(\sum_{j \neq i} r_j \delta_{ij} q_j \right) - r_i \left(\sum_{j \neq i} r_j \delta_{ji} q_i \right) \quad (5)$$

其中， δ_{ij} 为 j 型荧光粉发出的光被 i 型荧光粉吸收的概

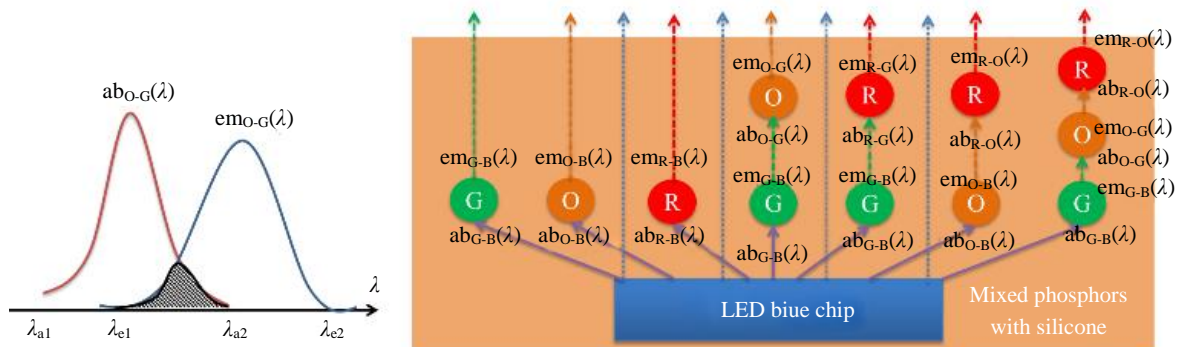


图 1 混合荧光粉中的再吸收

Fig.1 Reabsorption in phosphor mixture

率, 即 $ab_i(\lambda)$ 和 $em_j(\lambda)$ 光谱之间的重叠部分, 用公式(6) 表达为^[3]:

$$\delta_{ij} = \frac{\int_{\lambda_{ja}}^{\lambda_{ib}} |ab_i(\lambda) - em_j(\lambda)| d\lambda}{\int_{\lambda_{ja}}^{\lambda_{ib}} em_j(\lambda) d\lambda} \quad (6)$$

1.1.2 数据测量

选用英特美公司生产的 3 种类型荧光粉, 其分别为硅基氮氧化物绿色荧光粉 G525、氮化物红色荧光粉 R6535、钇铝石榴石基黄色荧光粉 YAG04, 分别用代号 1、2、3 表示。然后, 运用荧光粉激发光谱与热猝灭分析系统(型号 EX-1000, 中国远方光电)分别测量 3 种单色荧光粉的吸收光谱(ab_1 、 ab_2 、 ab_3)和发射光谱(em_1 、 em_2 、 em_3), 如图 2 和图 3 所示。通过公式(6)可以计算出参数 δ_{ij} , 然后再确定 3 种荧光粉的比例 r_i 和其量子效率 q_i 。对于 3 种不同类型荧光粉系统, k_i 可以用矩阵形式表达, 如公式(7)所示:

$$\begin{bmatrix} k_1 \\ k_2 \\ k_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_1 q_1 \\ r_2 q_2 \\ r_3 q_3 \end{bmatrix} \quad (7)$$

$$\begin{bmatrix} (1-r_2\delta_{21}-\delta_{31}) & r_1\delta_{12} & r_1\delta_{13} \\ r_2\delta_{21} & (1-r_1\delta_{12}-r_3\delta_{32}) & r_2\delta_{23} \\ r_3\delta_{31} & r_3\delta_{32} & (1-r_1\delta_{13}-r_2\delta_{23}) \end{bmatrix}$$

通过 MATLAB 编程计算比例系数 k_i 。在已知量子效率的前提下, 通过输入 3 种荧光粉的比例, 即可得到比例系数 k_i 。设定 3 种荧光粉的量子效率 q_1 、 q_2 、 q_3 分别为 0.75、0.8、0.78。例如, 当 3 种荧光粉的比例 r_1 、 r_2 、 r_3 分别为 7、1、2 时, 可计算出它们的比例系数 k_1 、 k_2 、 k_3 分别为 0.582、0.221、0.164。本文通过随机输入 3 种荧光粉的 80 组比例, 计算出 80 组比例系数 k_i , 作为以下神经网络计算的训练集和测试集。

1.2 BP 神经网络

1.2.1 BP 神经网络介绍

BP 神经网络是一种按误差反向传播训练的多层前馈网络, 它的基本思想是梯度下降法, 即利用梯度搜索技术以期使网络的实际输出值和期望输出值的误差均方差为最小。

1.2.2 BP 神经网络构建

不同类型荧光粉混合后发射光谱的比例系数会随着荧光粉的配比变化而变化, 本文通过 BP 神经网络实现对荧光粉混合发射光谱的预测。选择神经网络的输入为 YAG04、R6535 和 G525, 这 3 种荧光粉的体积比 r_i , 其中 $r_1+r_2+r_3=10$ 。输出为混合发射光谱的比例系数 k_i 。

BP 神经网络的基本参数需要根据具体的网络结构和预测数据来进行选择, 网络的参数选择将会直接影响到预测结果的误差大小, 网络参数选择的越合适, 网络

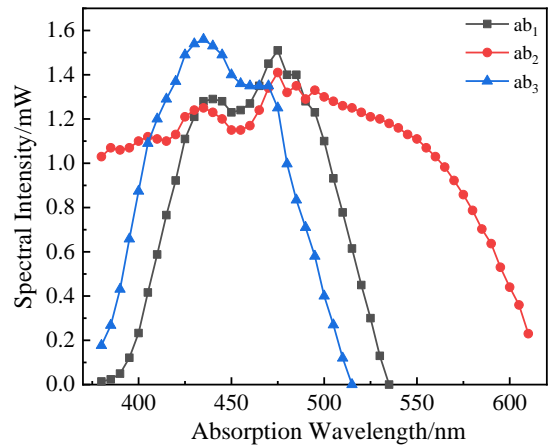


图 2 3 种荧光粉的吸收光谱

Fig.2 Absorption spectra of three phosphors

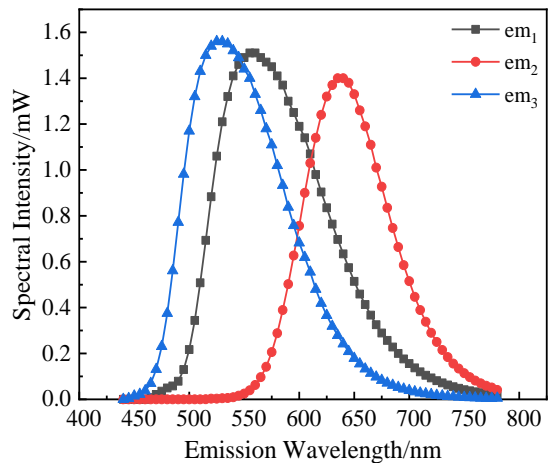


图 3 3 种荧光粉的发射光谱

Fig.3 Emission spectra of three phosphors

预测的结果也就越好。选择梯度下降算法作为网络的参数调整方法。学习次数、学习速率和目标均方误差分别设置为 1000、0.01 和 0.001。使用公式(8)对网络隐含层的节点数进行求解:

$$\begin{aligned} q &= \sqrt{n+m+a} \\ q &= \log_2 n \\ q &= \sqrt{nm} \end{aligned} \quad (8)$$

其中, q 为隐含层节点数, n 为输入层节点数, m 为输出层节点数, a 为 1~10 之间调节常数。

首先, 根据公式(8)可以计算得 3 种隐含层节点数数值, 找到其中的最小值和最大值; 然后, 从最小值开始逐个验证模型预测误差, 直到达到最大值; 最后, 选取模型误差最小的那个隐含层节点数。已知输入层节点数为 3, 输出层节点数为 3, 即 $n=3$, $m=3$, 可知 $3 \leq q \leq 13$ 。

为分析结果误差，引入误差百分比作为误差分析参数，见公式(9)：

$$E_p = \left| \left(\frac{r-p}{p} \right) \times 100\% \right| \quad (9)$$

其中， E_p 为误差百分比， r 为基于 Lambert-Beer 理论计算的比例系数， P 为基于神经网络预测的比例系数。误差百分比越小，则预测结果与计算结果越接近，预测结果可信度越高。

采用随机选择的方式选取网络训练集和测试集，训练集共有 75 组，测试集共有 5 组。测试集 5 组数据的输入参数见表 1。5 组测试集共产生 15 个误差分数，将这些误差分数累加得到总误差分数，令隐含层节点数等于 3~13 进行上述操作，保持训练集与测试集样本均相同，得到的不同隐含层节点数误差分数累加值如图 4 所示。

从图 4 可以看出，混合荧光粉发射光谱误差分数随着隐含层节点个数的增加而先骤减后在一定范围内上下波动，当神经网络隐含层节点数为 6 时，3 个比例系数的误差分数为最小，所以下文选择神经网络隐含层节点

表 1 测试集输入数据表

Table 1 Input data of test dataset

Number	r_1	r_2	r_3
1	7	1	2
2	5	3	2
3	2	2	6
4	2	6	2
5	3	3	4

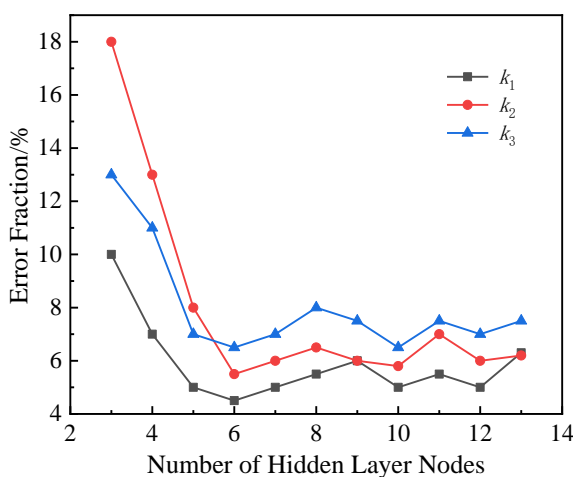


图 4 不同隐含层比例系数累积误差分数

Fig.4 Cumulative error fractions of proportional coefficients of different hidden layers

数为 6。BP 神经网络结构图如图 5 所示。随后对基于 BP 神经网络预测的比例系数与 Lambert-Beer 理论计算的比例系数之间的误差分数进行分析，如图 6 所示。统计每个比例系数的 5 组误差分数显示误差最大值可以控制在 5% 以内，说明了基于 BP 神经网络预测的精度较高。

2 发射光谱预测结果验证

图 7 为本文设计的不同荧光粉配比混合荧光粉的发射光谱预测值和测量值对比结果。采用均方根误差与色度差异对光谱的重合度进行评价，预测值和测量值偏差的平方和观测次数 n 比值的平方根被称为均方根误差 (root mean square error, RMSE)。色度差异 (Δxy) 是评价两色度之间差异的物理量^[19]。均方根误差与色度差异的值越小，光谱的重合度越高，预测也就越准确，它们的计算公式见式 (10) 和 (11)，计算得到结果见表 2。

$$\Delta xy = \sqrt{(x_m - x_e)^2 + (y_m - y_e)^2} \quad (10)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum (I_m(\lambda_j) - I_e(\lambda_j))^2}{n}} \quad (11)$$

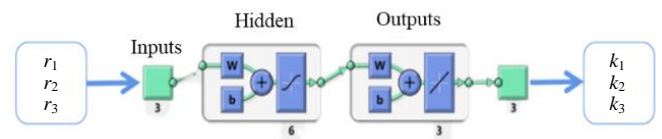


图 5 混合荧光粉发射光谱比例系数预测网络结构图

Fig.5 Prediction network structure of emission spectrum proportional coefficient of mixed phosphor

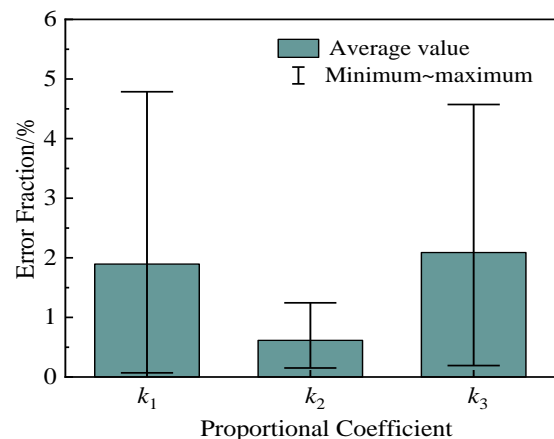


图 6 基于 BP 神经网络预测与 Lambert-Beer 理论计算的比例系数之间的误差分数

Fig.6 Error fraction of proportional coefficient predicted by BP neural network and Lambert-Beer theory

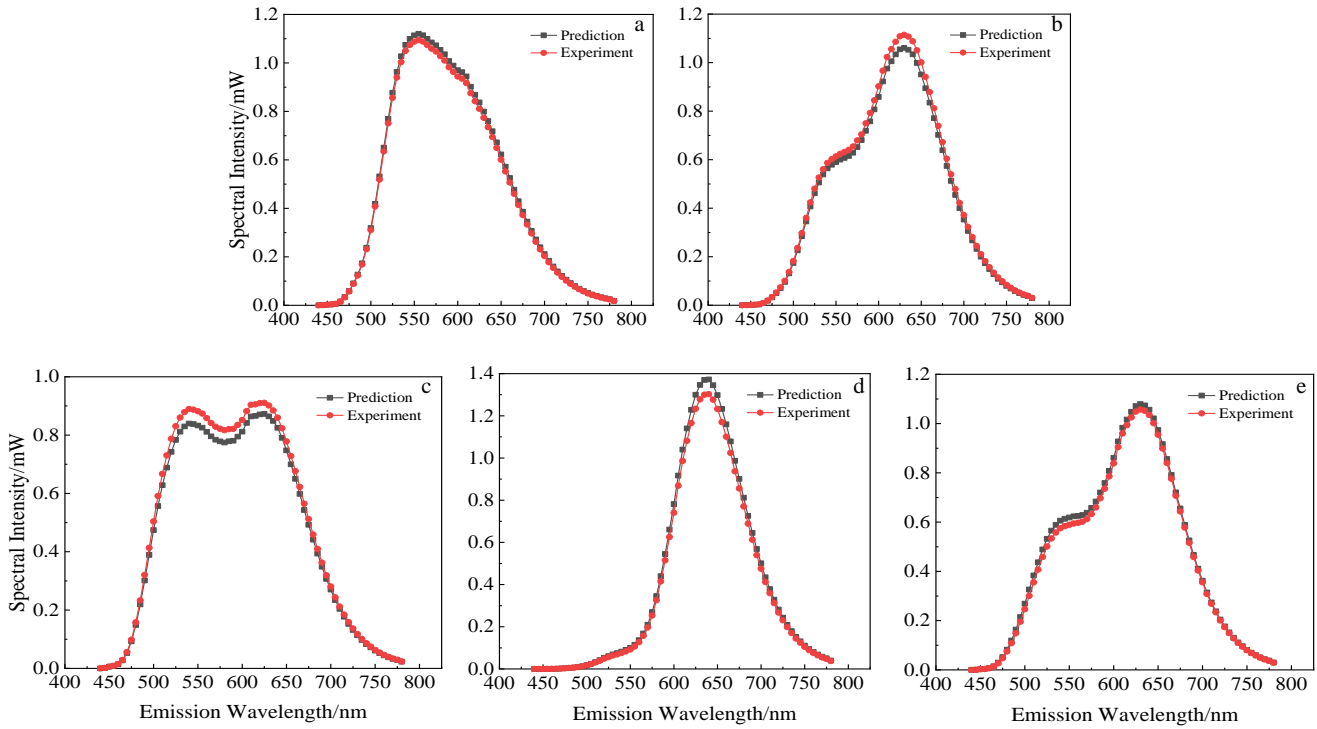


图 7 不同配比混合荧光粉的发射光谱预测值和测量值对比

Fig.7 Comparison of the emission spectra between predictions and measurements for mixed phosphors with different $r_1:r_2:r_3$ ratios: (a) 7:1:2, (b) 5:3:2, (c) 2:2:6, (d) 2:6:2, and (e) 3:3:4

表 2 发射光谱预测值和测量值的均方根误差与色度差异

Table 2 RMSE and chromaticity difference Δ_{xy} of the emission spectra between predictions and measurements

No.	$r_1:r_2:r_3$	RMSE	Δ_{xy}
1	7:1:2	0.016974	0.00064
2	5:3:2	0.002538	0.000922
3	2:2:6	0.029436	0.001581
4	2:6:2	0.031531	0.00099
5	3:3:4	0.018261	0.003945
Average value		0.019748	0.001616

由表 2 可以看出, RMSE 与 Δ_{xy} 的值较小, 平均值分别为 0.0197 和 0.0016, 这也定量地表明了发射光谱预测值与测量值之间误差较小。

3 结 论

1) 基于 BP 神经网络的比例系数预测值与理论计算值误差能控制在 5% 以内。

2) 通过 BP 神经网络预测的发射光谱与实验测量谱图重合度很高, 均方根误差和色度差异值较小, 预测精度较高。

3) 本文提出的研究方法对研制和设计高品质白光 LED 光源有一定的指导意义。

参考文献 References

[1] Schubert E F, Kim J K. *Science*[J], 2005, 308(5726): 1274

[2] IESNA TM-21. *Projecting Long Term Lumen Maintenance of LED Light Sources*[S]. New York: Transaction of the Illuminating Engineering Society of North America, 2011

[3] Yuan C A. *Optical Materials*[J], 2015, 50: 193

[4] Zhang M N, Fan J J, Qian C *et al.* *17th International Conference on Electronic Packaging Technology (ICEPT)*[C]. Florida: IEEE Xplore, 2016: 334

[5] Wenning M, Büchl N R, Scherer S. *Journal of Biophotonics*[J], 2010, 3(8-9): 49

[6] Demby's J, Gao Y, DeSouza G N. *IEEE International Conference on Fuzzy Systems (FUZZ-IEEE)*[C]. Florida: IEEE Xplore, 2019: 1

[7] Bärtschi P, Galloni C, Lange C *et al.* *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*[J], 2019, 929: 29

[8] Hudson D L, Cohen M E. *Neural Networks and Artificial Intelligence for Biomedical Engineering*[M]. New York: the Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc, 2000

- [9] Eremia M, Liu C C, Edris A A. *Advanced Solutions in Power Systems: HVDC, FACTS, and Artificial Intelligence*[M]. New York: Wiley-IEEE Press, 2016
- [10] Ahmed H, Nandi A K. *Condition Monitoring with Vibration Signals: Compressive Sampling and Learning Algorithms for Rotating Machines*[M]. New York: Wiley-IEEE Press, 2019
- [11] Chen H C, Chen W J, Zhou Y. *Ninth International Conference on Intelligent Information Hiding and Multimedia Signal Processing, Beijing*[C]. Florida: IEEE Xplore, 2013: 88
- [12] Lo J C C, Lee S W R, Guo X G *et al.* *Transactions of the Japan Institute of Electronics Packaging*[J], 2016, 9: E16-005-1
- [13] Liu H, Guo K, Zhang Z Y *et al.* *IEEE Transactions on Electron Devices*[J], 2017, 64(7): 2867
- [14] Ibrahim M S, Fan J J, Yung W K C *et al.* *Laser & Photonics Reviews*[J], 2020, 14(12): 2 000 254
- [15] Jing Z, Liu J, Ibrahim M S *et al.* *IEEE Electron Device Letters*[J], 2020, 41(12): 1817
- [16] Fan J J, Li Y T, Fryc I *et al.* *IEEE Photonics Journal*[J], 2020, 12(1): 1
- [17] Yuan C C A, Fan J J, Fan X J. *Journal of Mechanics*[J], 2020, 37: 172
- [18] Cao Y X, Yuan W Y, Chen W *et al.* *21st International Conference on Thermal, Mechanical and Multi-Physics Simulation and Experiments in Microelectronics and Microsystems (EuroSimE)*[C]. Florida: IEEE Xplore, 2020: 1
- [19] Supronowicz R, Fryc I. *Second Balkan Junior Conference on Lighting (Balkan Light Junior)*[C]. Florida: IEEE Xplore, 2019: 1

Predication of Emission Spectra for Mixed Phosphors Using Lambert-Beer Theory and Artificial Neural Network

Cao Yixing¹, Chen Shanghuan², Li Yutong², Du Yunjia², Chen Wei⁴, Fan Jiajie^{1,3,4}, Zhang Guoqi^{1,3}

(1. Institute of Future Lighting, Academy for Engineering & Technology, Fudan University, Shanghai 200433, China)

(2. College of Mechanical and Electrical Engineering, Hohai University, Changzhou 213022, China)

(3. EEMCS Faculty, Delft University of Technology, Delft 2528, Netherlands)

(4. State Key Laboratory of Solid State Lighting, Changzhou Institute of Technology Research for Solid State Lighting, Changzhou 213161, China)

Abstract: The emission spectra of high color rendering phosphors, mixed with the yttrium aluminium garnet, silicon based oxynitride and nitride based phosphors, were predicted by the Lambert-Beer theory and back propagation neural network (BP NN). Firstly, the modified Lambert-Beer model was used to calculate the proportional coefficient of the emission spectra of the mixed phosphors in ratios. Next, the BP NN was implemented to train and predict the proportional coefficients. Finally, the prediction of the emission spectra of the mixed phosphors was estimated and verified by the experimental measurements. The results show that the prediction error fraction of the proportional coefficients can be controlled within 5%; the predicted emission spectra by BP NN keep high agreement with the experimental measurements with lower RMSE and Δxy as 0.019 and 0.0016, respectively.

Key words: high color rendering LED; mixed phosphors; emission spectrum; Lambert-Beer theory; artificial neural network

Corresponding author: Fan Jiajie, Ph. D., Researcher, Institute of Future Lighting, Academy for Engineering & Technology, Fudan University, Shanghai 200433, P. R. China, E-mail: jiajie_fan@fudan.edu.cn