

■やさしい照明技術■

光源の量子効率と発光効率 (2)

Quantum Efficiency and Radiation Efficiency of Radiation Sources (2)


 名誉会員 中 川 靖 夫
Yasuo Nakagawa

1934年生。1957年東京都立大学工学部電気工学科卒。1968年工学博士。現在、埼玉大学名誉教授。著書「光の計測マニュアル」など。

◀キーワード：外部量子効率，内部量子効率，エネルギー効率，LED，蛍光，励起

1. 量子効率測定的基本的要件

発光の量子効率測定はかなり難易度の高い測光の一種であり，その要件は発光（蛍光）と励起の放射パワーを正しく測ることで，この目的に適合した分光装置と，光源，測定試料，光学系などを最も適した状態に空間配置して光路を調整する技術が必要である。

1.1 分光放射束の測定

発光の量子効率を測定するためには，前回記事（本誌10月号に掲載）の(3.2.1)～(3.2.3)式に示すように，励起された発光の分光放射束（光源から全空間に発散する放射パワーのスペクトル）を求める必要がある。

励起が放射でなされる場合（蛍光体など，前回(3.2.2)式，前回(3.2.3)式）は励起放射と発光の測定光学系の入射状態を同じにするなどの工夫によって，全空間に対する放射測定を行わないでも量子効率を測ることができるが¹⁾，電流励起の場合（LEDなど，前回(3.2.1)式）では分光放射束を必ず測定しなくてはならない。

分光放射束を測定する最も普遍的な方法は，試料光源と標準光源を積分球内で交互に点灯して，積分球の測光窓からの出射を分光装置に導いて分光測定することである²⁾。しかし，分光放射束(W/nm)の標準光源は公的には供給されていない。積分球内で使用する標準光源としては全光束標準電球があるが，この標準に値付けされているのは，全光束 Φ_v (lm)と分布温度 T_d (K)である。全光束 Φ_v と分光放射束 $P(\lambda)$ の関係は(1.1.1)式ようになる。

$$\begin{aligned}\Phi_v &= K_m \int_{360}^{830} V(\lambda) P(\lambda) d\lambda \\ &= K_l \int_{360}^{830} V(\lambda) P_{rel}(\lambda) d\lambda \quad \dots\dots\dots (1.1.1)\end{aligned}$$

ここで， K_m は最大視感効率(683 lm/W)， $P_{rel}(\lambda)$ は分光分布の相対値で， K_l は相対値を放射束に変換する係数である。 $P_{rel}(\lambda)$ が温度 T_d (K)の黒体放射の相対分光分布に等しいと仮定して， K_l を(1.1.2)式で求めて，これを $P_{rel}(\lambda)$ に乘じれば分光放射束が得られる。

$$K_l = \frac{\Phi_v}{\int_{360}^{830} V(\lambda) P_{rel}(\lambda) d\lambda} \quad \dots\dots\dots (1.1.2)$$

$$P(\lambda) = K_l P_{rel}(\lambda) \quad \dots\dots\dots (1.1.3)$$

しかし，この値は，(1) Φ_v の値付けが $V(\lambda)$ と完全に合致した受光器でなされている，(2) 相対分光分布は黒体と等しい，と仮定したものであるから，それに起因した不確かさがあることは免れない。

次に，標準と試料のサイズの相違が問題になる。試料がLED，蛍光体のいずれでもその全光束は数lm程度である，それに対して全光束標準電球は数100lmを超えるのが通常で，試料を1%以下の分解能で測定しようとするれば，測光器には 10^5 の範囲の直線性が要求される。また，自己吸収の補正量³⁾も大きくなることが予想される。小電力の全光束標準電球が得られればこれらの問題は緩和されるが，小電力の電球は安定性に欠ける場合が多い。

1.2 励起源の測定

電流励起の場合は特に問題は生じないが，放射励起の場合は測定に種々の制約が起こる。

この場合，積分球に装着した試料に照射する励起放射を正しく測定しなければならない。励起放射を測定する手段としては，(1) 試料の位置に標準反射面（BaSO₄圧着面など）を装着して，標準光源（分光放射照度標準など）と励起放射源からの放射を交互に照射して，比較測定する。(2) 試料の位置に分光応答度既知の受光器を設置して励起放射を測定する。などの方法があるが，励起放射は発光よりも短波長（紫外域のことが多い）であり，積分球の効率や受光器の応答度が低くなって，迷光や雑音の影響が大きくなること，受光器と試料の配置の同一性の確保，励起放射照度の受光面上での均斉度，などが不確かさの要因となり，再現性のよい測定を行うことは容易ではない。

2. 蛍光体量子効率測定の実例

量子効率測定用として，種々の装置・システムが発表・販売されているが，一般に高価で複雑なものが多い。ここでは，筆者が開発した，積分球を使用しないで，放射励起の粉状蛍光材の量子効率を比較的容易に，低コストで測定する装置と方法を紹介する。なお，この方法と測定結果の公表は本稿が最初であることをお断りしておく。

2.1 励起放射源

2.1.1 単一波長のもの

蛍光ランプ用蛍光体などが対象であれば，254 nm 単一波長放射源として，殺菌ランプが使用できる。十分に

枯化すれば安定なものが多い。GL-4(4W)で照射距離200mm程度で、 $0.1\text{mW}/\text{cm}^2$ 程度の放射照度が得られる。ただし、殺菌ランプには254nm以外の放射もあるので(10%程度)、それらを差し引く操作が必要である。また、ブラックライト蛍光ランプが、ピーク波長が355nm付近で半値波長幅が50nm程度の準単色放射源として使用できる。

2.1.2 波長可変のもの

LED用蛍光体などを対象としたときには、励起放射の波長を選択できることが望まれる。このような目的には、Xeランプとモノクロメータを組み合わせた単色放射源を用いる。モノクロメータとしては、小型で明るい(F3.5程度)固定スリットのものが安価に入手できる。Xeランプは150Wで、集光光学系で入射スリットに結像入射させる。集光光学系は色収差を避けるためには凹面鏡がよいが、波長範囲を限定すれば、石英単レンズでもよい。

光学系と光源は上下左右の微調整ができるステージに設置して、出射単色放射の均斉度が調整できるようにする。図1、図2はこのような放射源の出力特性と出射ビームの均斉度(照射面 $10\times 10\text{mm}$ 、25点の測定値の平均に対する標準偏差)の一例である。集光系は

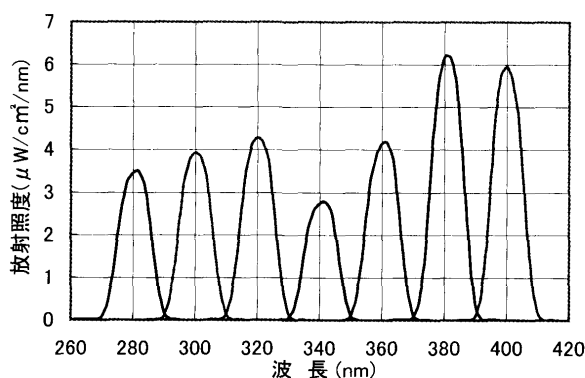


図1 励起放射源の出力特性

Fig.1 Output characteristics of phosphor excitation source.

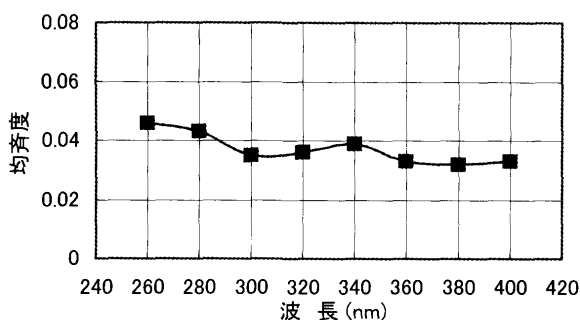


図2 励起放射の均斉度

Fig.2 Uniformity of phosphor excitation irradiance.

$f=50\text{mm}$ 石英レンズで、モノクロメータのスリット機械幅は2mm、帯域幅は約11nmである。この程度の能力があれば励起放射源として十分である。

2.2 蛍光発光の測定系

基本的には、通常の分光放射計と同じであるが、微弱な放射の測定をするので、迷光の除去に注意する。図3にその一例を示す。この測定系では、入射拡散面の位置に標準反射面と蛍光面を交互に設置して測定する。測定面の像(放射)はリレーレンズ系で、いったん、中間レンズ L_2 上に結像させて、ここに設けた絞りで面積を規定して、この面積のビームをモノクロメータの分散系(回折格子)上に投射する。分散系は設定波長によって開口の状態が変わり、受光面積が変わるので、投射ビームの広がりや開口の最小サイズより小さくして、励起放射測定と蛍光測定のための入射幾何学的条件(面積)が同じになるようにした。

2.3 測定の手順

同じサイズのセルで、 BaSO_4 粉末を圧着した標準反射面と粉状蛍光体を圧着した試料を用意して、これを図3のDfの位置に交互に設置して、以下の手順で測定する。

(1) Dfの光軸上で分光反射率測定用光源(電球、重水素ランプ)を点灯して、標準反射面と試料を比較測定して、試料の分光反射率 $R(\lambda)$ (0/45のラジアンズファクタ)を測定する。このとき、光路上に適宜、測定波長よりも短波長を遮断するフィルタを入れて、反射光測定に際して蛍光が発生しないようにする。標準の分光反射率 $R_s(\lambda)$ は文献⁽⁴⁾⁽⁵⁾値が利用できる。

(2) 標準反射面をDfの位置に設置して、分光放射照度標準を光軸上の所定の位置で点灯して、励起波長から蛍光発光波長にわたる波長域で波長走査して測定系の応答 $S(\lambda)$ を求める(測定系の校正)。標準の分光放射照度を $E_s(\lambda)$ 、測定系の出力の読みを $I_s(\lambda)$ とすると、

$$S(\lambda) = E_s(\lambda) / I_s(\lambda) \quad \dots\dots\dots (2.3.1)$$

である。分光放射照度標準はハロゲン電球または重水素

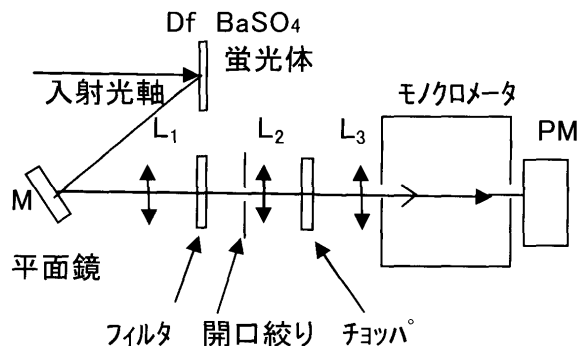


図3 蛍光発光測定系の光路

Fig.3 Optical systems of fluorescence measurement.

ランプ⁽⁶⁾であるが、励起放射が254nmのときは殺菌放射の標準を用いてもよい。

(3) 励起放射源を光軸上に設置して、標準反射面を照射して測定系を波長走査する。ここで、測定系の出力の読みを $I_{ex}(\lambda)$ とすると、 D_f の位置での励起分光放射照度 $E_{ex}(\lambda)$ は、

$$E_{ex}(\lambda) = I_{ex}(\lambda) \cdot S(\lambda) \dots\dots\dots (2.3.2)$$

である。

(4) この状態で標準反射面を外して試料に置き換えて、蛍光発光の波長域で測定系を波長走査する。測定系の出力の読みを $I(\lambda)$ とすると、蛍光体の分光放射発散度(蛍光面の放射密度) $E(\lambda)$ は、式(2.3.3)のようになる。ここで $R_s(\lambda)$ は標準反射面の分光反射率である。

$$E(\lambda) = I(\lambda) \cdot S(\lambda) \cdot R_s(\lambda) \dots\dots\dots (2.3.3)$$

$R_s(\lambda)$ を乗ずるのは、比較の対象が放射照度ではなく、放射束発散度のためで、分光放射照度標準で照射した標準反射面を分光放射発散度の標準とするからである。

(5) 励起放射が殺菌ランプのときは、(4)の状態で光路に254nmを遮断するフィルタを入れて再度波長走査して、254 nm 放射以外の励起による発光、殺菌ランプの可視域発光を求めて、差し引く。

このようにして測定した $E(\lambda)$ と $E_{ex}(\lambda)$ を、前回記

事の式(3.2.2)または式(3.2.3)の $P(\lambda)$ と $P_{ex}(\lambda)$ とみなして代入すれば、量子効率が求められる。放射照度、放射束発散度が放射束(放射束=放射照度(発散度)×面積)とみなせるのは、これらの測定が同じ受光(発光)面積でなされていて、それが分母、分子で相殺されるからである。内部量子効率は、前回2.2.3項で述べたように、励起放射から反射成分を除いた量、 $E_{ex}(\lambda) \times (1-R(\lambda))$ を分母として計算する。

2.4 積分球を用いないでよい理由

この測定法では、標準反射面の反射配光と蛍光の配光が同じであることを前提として、積分球を用いずに、試料の45度方向の発光(反射光)が全光束(放射束)と比例的な関係にあるとみなして測定を行っている。この関係を確認するために、後述する全ての試料について、発光の配光を測定して、標準反射面の反射配光と比較した。その結果、これらの配光はいずれも完全拡散に近く、配光の相違によって生ずる不確かさは1%以下であった。

3. 測定結果

3.1 254nm 励起の蛍光体

蛍光ランプ用の蛍光体5種について測定した結果を表1に示す。励起は254nmで放射照度は $71 \mu W/cm^2$ である。発光の分光分布は図4、図5に示す。

内部量子効率と外部量子効率の差はどの試料でも大き

表1 蛍光ランプ用蛍光体の量子効率とエネルギー効率

Table 1 Quantum and energy efficiency of phosphors for fluorescent lamps.

記号	組 成	光色	量子効率		エネルギー効率	備考
			内部	外部		
4N	$Ca_{10}(PO_4)_6(F,Cl)_2 : Sb, Mn$	昼白	0.772	0.725	0.347	Tc 5000 K
6B	$(Sr, Ca, Ba)_{10}(PO_4)_6Cl_2 : Eu$	青	0.849	0.778	0.424	3 波長用
7G	$La(P, B)PO_4 : Ce, Tb$	緑	0.874	0.846	0.421	3 波長用
8R	$Y_2O_3 : Eu$	赤	0.853	0.726	0.302	3 波長用
10W	6B, 7G, 8R 混合	白	0.849	0.779	0.370	Tc 4200 K

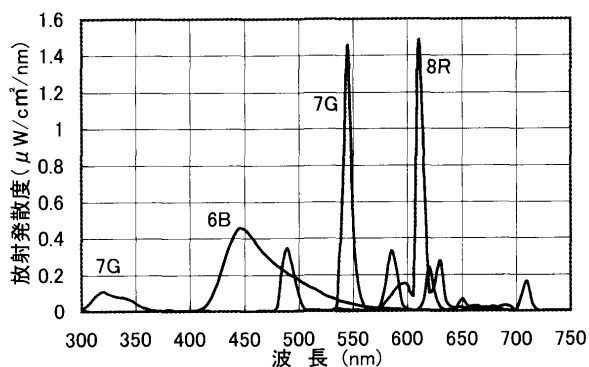


図4 青、緑、赤色蛍光体の分光放射発散度(励起波長254nm)

Fig.4 Spectral radiation exitance of blue, green and red phosphors (254nm excitation).

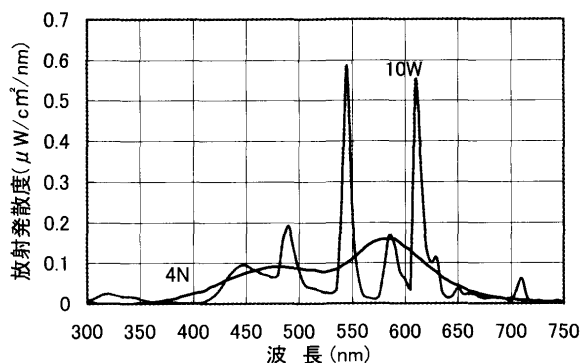


図5 白色蛍光体の分光放射発散度(励起波長254nm)

Fig.5 Spectral radiation exitance of white phosphors (254nm excitation).

表2 励起波長と量子効率, エネルギー効率の関係 (青色蛍光体)

Table 2 Relationship between excitation wavelength and quantum efficiency of blue phosphor.

励起波長 (nm)	量子効率		エネルギー 効率
	内部	外部	
260	0.847	0.753	0.462
280	0.869	0.730	0.441
300	0.917	0.818	0.536
320	0.899	0.813	0.569
340	0.904	0.775	0.575
360	0.914	0.652	0.516
380	0.865	0.520	0.432
400	0.844	0.366	0.318

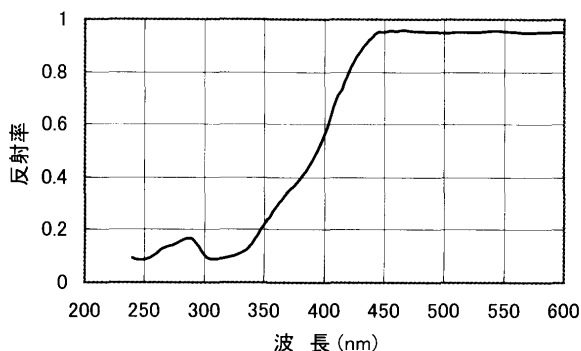


図6 NP-107-58 青色蛍光体の分光反射特性
Fig.6 Spectral reflectance of NP-107-58 blue phosphor.

くないが, これは254nmの反射率が低いためである。

3.2 量子効率の励起放射波長依存性

紫外域の比較的広い範囲で反射率の低い(吸収が大きい)蛍光体 NP-107-58 (表1の6Bと類似)について励起波長を260~400nmとして測定した結果を表2, 図6~図8に示す。発光の分光分布は励起波長にかかわらずほとんど一定である。エネルギー効率は外部量子効率に対応する値で, 励起波長が長波長になれば, 量子効率が低下してもエネルギー効率は有利な場合があることが分かる。また, この試料では, 内部量子効率は必ずしも吸収(反射)の程度とは相関していない。

4. LED 量子効率測定の実例

4.1 測定法

LEDの場合は前述したように, 分光放射束の直接測定が必要で, そのための分光放射束標準をいかに整えるかが測定の隘路となる。筆者は, 5mm LED とほぼ同寸法の, 医療用などに用いられる超小型のハロゲン電球 (Welch Allyn 998418-13, 5V, 1A) を分光放射束標準にして

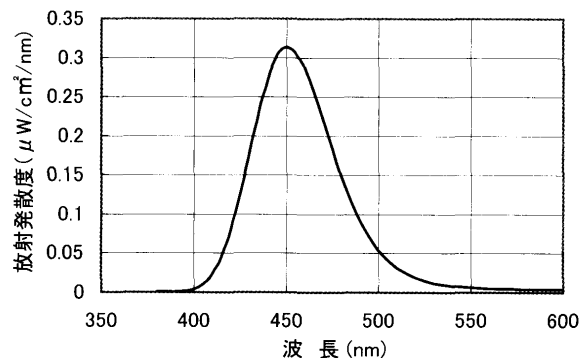


図7 NP-107-58 青色蛍光体の分光放射発散度 (励起波長 280nm)

Fig.7 Spectral radiation exitance of NP-107-58 blue phosphor (280nm excitation).

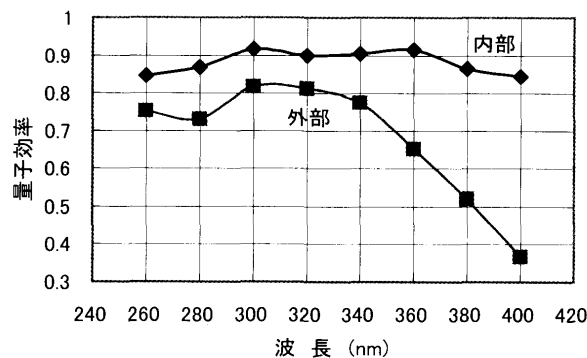


図8 NP-107-58 青色蛍光体量子効率の励起波長依存性
Fig.8 Relation between quantum efficiency and excitation wavelength of NP-107-58 blue phosphor.

量子効率を測定した。この標準の設定の詳細は誌面の関係で割愛するが, 全光束は配光法で, 分布温度(相対分光分布)は, この電球を積分球内で点灯した放射の出射と, 同じ積分球に外部から光度標準の放射を入射した状態での出射を比較して, 値付けした。値は個体によって多少の差があるが, 全光束は50 lm程度, 分布温度は2850K前後である。出力の安定性は30W程度の光度標準に比べて格段によく, 経時特性は0.1% / h以下であった(10h 枯化後)。この標準と5mm LEDをJIS C 8152に準拠した方法で120mm積分球内で点灯して測定した結果を表3に示す。この結果も初出データであることをお断りしておく。

4.2 測定結果

LEDの量子効率は品種でかなり差があることが分かる。同品種(ロット)間のばらつきは比較的少ないようである。なお, ここに示す量子効率は, LEDのパッケージ(エポキシ樹脂など)での損失を考慮していないので, 実質はこの1.1~1.2倍程度と考えられる。

LEDの内部量子効率については, 種々の値が示され

表3 5mm LEDの光特性と量子効率(順方向電流 I=20mA)

Table 3 Optical characteristics and quantum efficiency of 5mm type LEDs (I=20mA).

形 名	全光束 (lm)	放射出力 (mW)	光色	量子効率	エネルギー 効率	入力電力 (mW)	色度座標	
							x	y
NSPW515BS	2.38	8.77	白	0.191	0.137	64.2	0.3017	0.2948
NSPW510	2.61	8.74	白	0.194	0.134	65.0	0.3278	0.3369
EIL-51-YW	3.03	8.95	白	0.200	0.139	64.4	0.3478	0.3760
NSPL500S	1.96	5.88	電球	0.139	0.093	63.1	0.4496	0.4232
EIL-53-3B	0.45	5.59	青	0.107	0.088	63.6	0.1223	0.0810
NSPB500S	0.66	9.57	青	0.180	0.150	63.8	0.1348	0.0616
FR5364X	0.62	3.67	赤	0.094	0.103	35.5	0.6995	0.3004
HB5066X	0.09	2.94	赤	0.080	0.083	35.5	0.7254	0.2736

ているが、筆者はその測定法や値の不確かさに関する詳しい情報を入手していないので、ここで示した外部量子効率との開きがどの程度かは、論議できない。放射励起と電流励起は形態が異なるので一律に比較はできないが、前述した蛍光体程度の内部量子効率であれば、内部損失の低減化で大幅な光出力の向上が期待できるわけである。

5. 結び

以上、2回にわたって、光源の量子効率と発光のエネルギー効率、光源効率の考え方と量子効率の測定法、実際のデータについて論評した。前回記事の冒頭にも述べたとおり、固体照明にかかわる方々の一助になれば幸い

である。

参考文献

- (1) 大久保和明, 重田照明: NBS 標準蛍光体の量子効率の測定, 照学誌, 83-2, pp.87-93 (1999).
- (2) 照明学会・技術規格 JIEC-002: 分光測光による測光標準用放電ランプの全光束測定法 (2005).
- (3) JIS C 8152: 照明用白色発光ダイオード(LED)の測光方法(2007).
- (4) Grum, F. and Wightman, T. E.: Absolute Reflectance of Eastman White Reflectance Standard, Appl Opt, 16-11, pp.2275-2276.
- (5) 中川, 大谷, 谷治: 白色拡散面の紫外・可視域での分光反射率, 照学誌, 70-10, pp.545-549 (1986).
- (6) 中川靖夫, 大谷文雄: 紫外放射標準の電球工業会目盛と産業技術総合研究所目盛の整合について, 電球工業会報, 484, pp.2-3 (2006).

照明学会誌原稿募集

現在、学会誌は年13号発行されております。このうち4号は論文号、1号は年報号として発行され、残りの8号が特集号となっております。

その中で一般記事のみの学会誌の発行も企画いたしております。記事の種別は問いませんので、皆様からの積極的なご投稿をお待ちいたしております。

記事の種別: 論説, 座談会, 技術総説, 資料, 施設報告, 解説, ミニ解説, 誌上討論, 研究室紹介, 会議報告, 寄書, 会員の広場, やさしい照明技術, 楽しいあかりのヒント, 私の視点, 支部だより

執筆要領: 「寄稿のしおり(一般号・年報号)」(照明学会HPに掲載)をご参照下さい。

掲載号: 学会誌編集委員会で決定いたします。

申込先: 〒101-0048 千代田区神田司町2-8-4 吹田屋ビル3階

TEL: 03-5294-0101 FAX: 03-5294-0102

E-mail: ieijjour@sepia.ocn.ne.jp URL: <http://www.ieij.or.jp/>

原稿提出先: 社団法人照明学会 学会誌編集担当: 中村三七雄