

ИСТОКИ И БУДУЩЕЕ ТВЕРДОТЕЛЬНОГО ОСВЕЩЕНИЯ

**А.П. Карташова, кандидат физико-математических наук, доцент.
Санкт-Петербургский университет ГПС МЧС России**

Приведен краткий исторический обзор работ по полупроводниковым светодиодам. Рассмотрены тенденции и перспективы развития твердотельного освещения. Указана роль описания структурных особенностей материала для улучшения параметров излучения светодиодов.

Ключевые слова: светодиоды, твердотельное освещение, мультифрактальный анализ, характер организации наноматериала, внешняя квантовая эффективность

ORIGINS AND FUTURE OF SOLID STATE LIGHTING

A.P. Kartashova. Saint-Petersburg university of State fire service of EMERCOM of Russia

This article provides a brief historical overview of semiconductor LEDs. Examined trends and prospects for the development of solid-state lighting. A role is specified in the description of the structural characteristics of the material to improve the parameters of radiation of the LEDs.

Keywords: light-emitting diodes, solid-state lighting, multifractal analysis, nanostructural arrangement of the material, external quantum efficiency

Нобелевская премия 2014 г. по физике присуждена японским ученым Исаму Акасаки, Хироси Амано и Шуджи Накамура «за изобретение эффективных синих светодиодов, обеспечивающих яркие и энергосберегающие источники белого света». В начале XXI в. открылись новые возможности создания энергосберегающего освещения. На цели освещения в мире расходуется примерно 20 % от всей производимой электроэнергии (2×10^{12} кВт·час в год). При этом широко распространенные для целей освещения лампы накаливания имеют крайне низкую светоотдачу около 10 лм/Вт (в усовершенствованных галогенных модификациях ~ 20–25 лм/Вт), а наиболее эффективные люминесцентные лампы низкого давления – около 80 лм/Вт, и эти значения близки к физическому пределу. Кроме того, лампам присущи такие недостатки, как весьма ограниченный срок службы – от нескольких сотен до десяти тысяч часов, механическая хрупкость, наличие разогретых элементов и др. Необходимость решения проблемы энергосберегающего освещения инициировала развитие новой отрасли техники, которая в буквальном переводе с английского звучит как «твердотельное освещение» (Solid-State Lighting). По существу, речь идет об использовании полупроводниковых спонтанных источников излучения – светодиодов (СД) для решения широкого круга светотехнических задач. Среди них сигнальные системы большого радиуса действия – светофоры, маяки, бортовые огни, навигационные огни; крупномасштабные информационные табло; локальные осветительные системы для медицинского оборудования, автомобилей, взрывоопасных объектов и т.д. Наконец, наиболее амбициозный проект связан с применением светодиодов для общего освещения (general illumination), и для его реализации необходимы мощные белые СД на основе нитридов III-группы. Надежды на решение проблемы энергосберегающего освещения не случайно возлагаются на светодиоды. СД потребляют около 17 % электрической энергии относительно ламп накаливания и в два раза меньше, чем люминесцентные лампы. Ресурс работы лучших светодиодов составляет сто тысяч часов (10 лет), что примерно в 300 раз больше, чем у накальных ламп и в 90 раз больше, чем у компактных. СД имеют малый вес, устойчивы к деформациям и вибрациям и не представляют экологической опасности. Теоретический предел светоотдачи белых светодиодов близок к 350 лм/Вт. Экономия электроэнергии при внедрении светодиодного освещения (по оценкам, сделанным в США) будет эквивалентна отказу от строительства 100 атомных электростанций. О масштабах и перспективах работ

в указанном направлении свидетельствует множество фактов. Это и принятие специальных государственных программ по твердотельной светотехнике в США, Европе, Китае, Японии и Корее, и быстрый рост капиталовложений и объема рынка мощных полупроводниковых светодиодов, и нарастающий поток статей, патентов и конференций по данной тематике [1–5].

Предполагается, что в 2016 г. общий объем светодиодного рынка будет превышать 20 млрд долл. В нашей стране исследование и разработка технологии белых СД проводится российскими академическими и университетскими организациями и отечественными промышленными фирмами, в том числе ЗАО «Светлана-Оптоэлектроника» (Санкт-Петербург). Однако реализация потенциальных преимуществ светодиодов как источников света требует еще значительных усилий по их разработке и совершенствованию. В первую очередь это совершенствование технологии эпитаксиального выращивания нитридных AlGaInN/GaN квантово-размерных гетероструктур, являющихся основой большинства мощных современных СД видимого диапазона, в том числе и белых. Для подобных применений помимо высокой эффективности требуется также высокая выходная оптическая мощность, а значит использование больших плотностей тока накачки. Создание твердотельных источников освещения белым светом идет по нескольким направлениям. Наиболее развитое из них на сегодняшний день – использование синих светодиодов на основе квантоворазмерных гетероструктур InGaN/GaN с люминофорным покрытием. Следует отметить, что в настоящее время серийные СД имеют светоотдачу 160–200 лм/Вт, а рекордные лабораторные образцы достигли 303 лм/Вт, что приближается к теоретическому пределу (350 лм/Вт) [6]. Однако основная проблема, препятствующая успешному решению задачи энергосберегающего твердотельного освещения – падение внешней квантовой эффективности этих СД начиная с низких плотностей тока 10 А/см^2 (для сравнения – в красных СД этот эффект начинается при плотностях тока 100 А/см^2), не решена, и природа этого эффекта не выяснена. Этот эффект приводит к потерям мощности до 50 % в рабочем режиме плотностей тока $100\text{--}200 \text{ А/см}^2$ и, как следствие, к тому, что стоимость 1 лм светового потока оказывается существенно выше, чем у люминесцентных ламп. Прежде чем обсуждать возможные пути решения этой проблемы, кратко вспомним историю развития синих СД, особенности технологии этих материалов и их структурных, электрических и оптических свойств.

История создания первых СД на основе нитридов III-группы достаточно драматична [1]. Разработки светоизлучающих приборов для коротковолновой области спектра на основе нитридов III-группы начались в нескольких странах мира, в том числе и в России в 60-х гг. прошлого века. Однако сразу же возникла проблема роста слоев, жидкофазная эпитаксия не обеспечивала получение гладких слоев. Важным этапом в выращивании GaN были работы Маруска по получению кристаллов GaN методом газофазной эпитаксии (HVPE). Первые СД на GaN были получены в 1971 г. в США Ж.И. Панковым, а в России в 1977 г. – С.И. Радауцаном и В.Г. Сидоровым с сотрудниками. Эффективность СД составляла десятые доли процента. Для получения эффективных источников излучения необходим был p-n переход и зеркально-гладкие эпитаксиальные слои. Получение слоя p-типа проводимости стало камнем преткновения на многие годы, так как легирование GaN примесями Mg, Zn, Be, которые должны были действовать как акцепторы, не обеспечивало получение p-типа проводимости. В результате во многих странах, в том числе и в России, к середине 70-х гг. финансирование этих работ практически прекратилось. Работы продолжали отдельные энтузиасты. Сапарин Г.В. и Чукичев М.В. (МГУ) в 1981–1982 гг. обнаружили люминесценцию GaN, легированного магнием, под действием электронного пучка.

Японскому профессору И. Акасаки в 1986 г. удалось получить методом эпитаксии из металлоорганических соединений пленки GaN высокого качества, благодаря выращиванию тонкого зародышевого слоя AlN на сапфире и последующего роста GaN, что отчасти позволило снять несоответствие параметров решетки. Кроме того, И. Акасаки и Т. Аmano обнаружили свечение GaN, легированного магнием, под действием электронного пучка и установили, что получен материал p-типа проводимости. Однако эти сообщения не привлекли внимания, также как статьи молодого исследователя Ш. Накамуры [5] из практически неизвестной в оптоэлектронной промышленности компании «Nichia Chemical

Industries Ltd.». Сообщение этой компании в ноябре 1993 г. о завершении разработки голубых СД на основе GaN и о начале их массового производства было подобно взрыву атомной бомбы. С этого момента Ш. Накамура много лет был лидером в разработке СД на основе III-нитридов. Первый коммерческий СД (рис. 1) был сделан Ш. Накамурой в 1994 г. и имел эффективность 5,4 %.

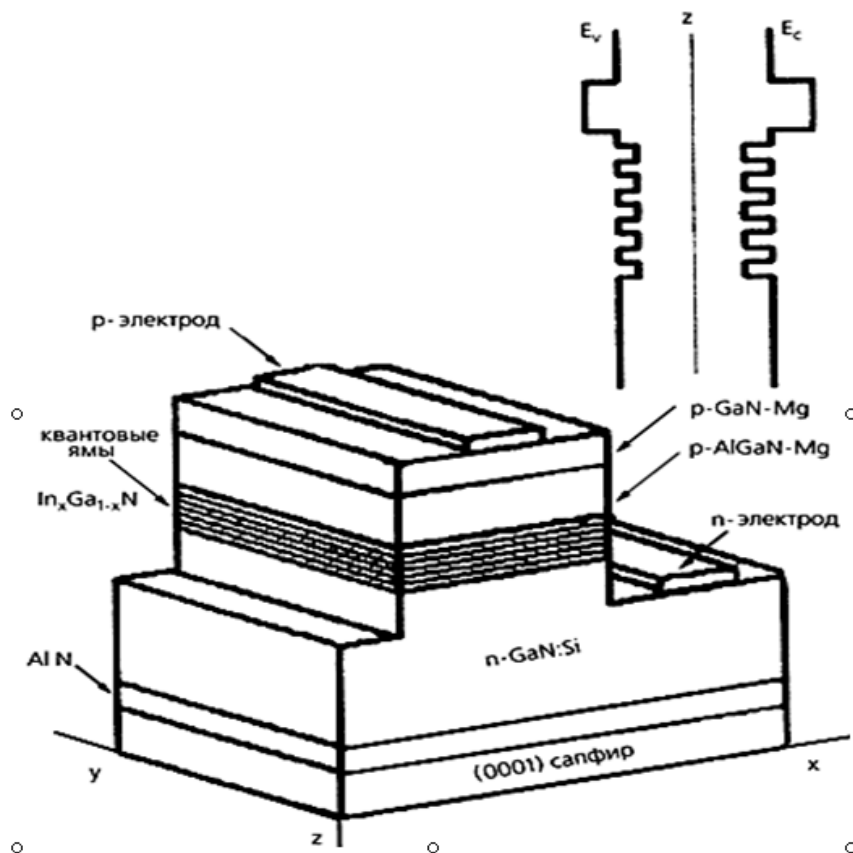


Рис. 1. Конструкция светодиода Ш. Накамуры

Потребовалось больше 10 лет, чтобы улучшить этот параметр до 60 % объединенными усилиями нескольких фирм и гигантскими финансовыми вложениями. В России работы по развитию этого направления возобновились в годы перестройки, когда финансирование было сведено к минимуму, но благодаря энтузиазму профессора МГУ А.Э. Юновича направление выжило. В 1997 г. А.Э. Юновичем была организована ежегодная российская конференция «Нитриды галлия, индия и алюминия – структуры и приборы», объединившая энтузиастов, число которых растет с каждым годом. Почему же путь в светлое будущее оказался таким долгим и сложным? Казалось бы, конструктивное решение вполне понятно: физика светоизлучающих приборов на основе гетероструктур A^3B^5 исследована и пути повышения квантовой эффективности СД выяснены в многочисленных исследованиях, в том числе и наших соотечественников, сотрудников Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе, во главе с Ж.И. Алферовым. Технология, позволяющая реализовать светодиодную структуру на III-нитридах, найдена, и ростовые установки выпускаются несколькими фирмами. Тем не менее в течение нескольких лет никто не мог приблизиться к параметрам, полученным Ш. Накамурой, а свойства даже единичных слоев GaN, выращенных на однотипных установках в близких режимах, более того, даже на одной установке, но в разных процессах, могли отличаться, например по подвижности носителей, почти на порядок. Результаты исследований, проведенных в различных лабораториях мира, показали, что этот эпитаксиальный материал по своим структурным свойствам принципиально отличается от традиционных гетероструктур A^3B^5 и не только высокой плотностью дислокаций (краевых, винтовых, а также смешанного типа) до 10^{10} см^{-2} , но и мозаичной или доменной структурой (рис. 2) [7, 8]. Кроме того, он содержит дефекты упаковки, микропоры и микротрубки.

Эти структурные особенности типичны как для отдельных слоев, так и светоизлучающих структур [7, 9]. Формирование такой сложной внутренней организации наноматериала нитридов Ш-группы обусловлено, во-первых, способом его получения в неравновесных условиях, во-вторых, на подложках, рассогласованных с растущим слоем, в-третьих, гексагональной модификацией, когда постоянная решетки по оси c значительно отличается от постоянных решетки a и b .

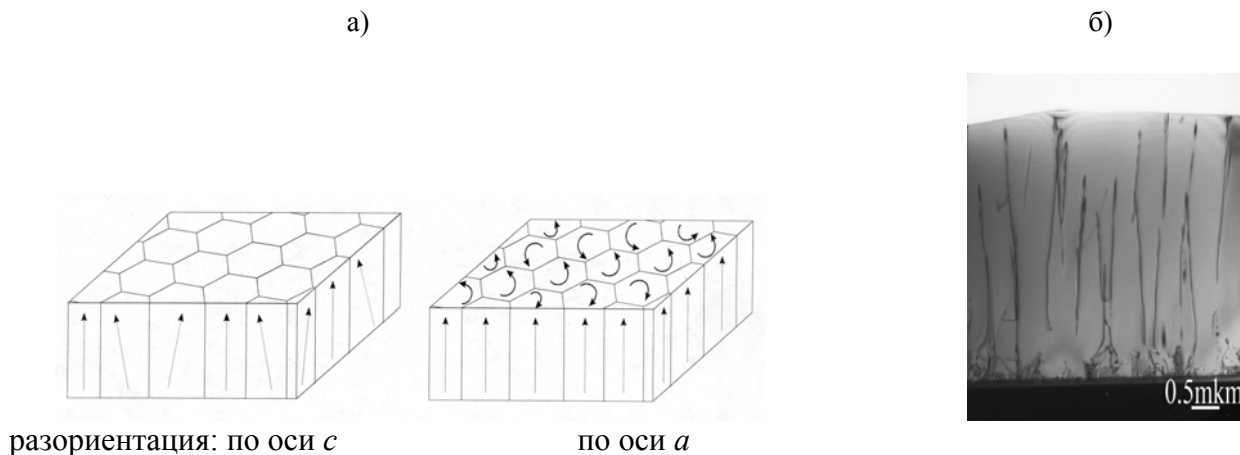


Рис. 2. Структурные особенности нитридов Ш-группы: а) модель доменной структуры; б) типичное изображение слоя GaN в просвечивающем микроскопе (хорошо видны прорастающие дислокации, пронизывающие весь слой и образующие доменную или мозаичную структуру)

Рост осуществляется в несколько стадий: на начальной стадии роста формируется зародышевый слой, идет образование дислокаций несоответствия и появляются островки (нанодомены) с размерами от нескольких до десятков нанометров, имеющие разные углы наклона и разворота оси c относительно друг друга (рис. 3).

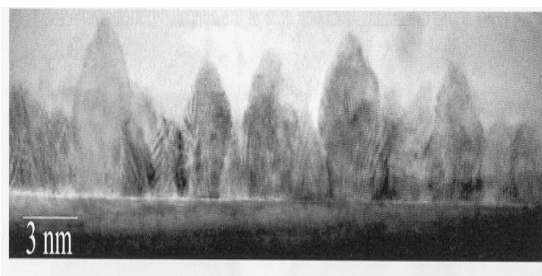


Рис. 3. Начальная стадия роста, формирование зародышевого слоя (просвечивающая микроскопия)

На последующих стадиях происходит разрастание доменов и релаксация дислокаций на границах доменов и вырастает эпитаксиальный слой со следами доменных границ. За эти годы разработано множество способов управления этими стадиями роста, направленных на снижение плотности прорастающих дислокаций. Обширная литература посвящена этим важнейшим и интереснейшим вопросам [10, 11]. Отметим лишь то, что, несмотря на многолетние усилия, снизить плотность дислокаций до значений меньше 10^4см^{-2} , типичной для полупроводников A^3B^5 , не удалось. Более того, средняя плотность дислокаций по-прежнему достаточно высока – 10^8см^{-2} , но при этой плотности фирма Cree получила светодиоды с внешней квантовой эффективностью 40 %, хотя в теоретических работах предсказывалось, что повышения эффективности более 20 % можно ожидать при снижении плотности дислокаций до значений меньше 10^7см^{-2} [12]. До сих пор отсутствует общепринятая

точка зрения о роли дислокаций в формировании электрических и оптических свойств как отдельных слоев, так и светоизлучающих структур [13]. В результате механизм безызлучательной рекомбинации не выяснен. Не лучше обстоит дело и с механизмом излучательной рекомбинации. Из многолетней практики разработки СД на других материалах следует однозначный вывод, что при такой плотности протяженных дефектов излучательная рекомбинация должна быть полностью подавлена. Однако СД на нитридах светят. Есть несколько предположений: малая диффузионная длина дырок, низкая электрическая активность дислокаций, локализация носителей в потенциальных ямах, связанных с флуктуациями состава твердого раствора InGaN (модель с квантовыми точками), «залечивание» дефектов атомами индия [3]. На сегодняшний день общепринятых механизмов, объясняющих высокую квантовую эффективность СД на этих материалах, не выработано.

Существующие модели, как правило, удовлетворительно объясняют спектры электролюминесценции, причины улучшения параметров конкретного исследуемого СД, но не дают ясных рекомендаций по увеличению квантовой эффективности и мощности излучения СД, в том числе и при плотностях тока выше 100 А/см^2 . Экспериментальные результаты разных исследователей нередко противоречивы, а компании – лидеры в получении высокоэффективных СД, как правило, приводят только лучшие значения полученных параметров, а не результаты исследований. Представляется, что противоречия и трудности в понимании физических механизмов и в развитии теоретических представлений во многом связаны, как уже упоминалось, с многообразием форм организации наноматериала светоизлучающих структур, большой энергией ионизации акцепторных примесей (160–200 мэВ, что в несколько раз больше, чем на традиционных материалах), а также с особенностями твердого раствора InGaN. Распад твердого раствора начинается с малых толщин 4 нм, что препятствует исследованию его объемных свойств, а, кроме того, активную область СД приходится делать составной в виде набора ям и барьеров. Организация наноматериала твердого раствора существенно зависит от организации наноматериала поверхности, на которой проводится рост слоя. Это приводит к тому, что информация о свойствах твердого раствора InGaN извлекается из исследований спектров фотолюминесценции и электролюминесценции светоизлучающих структур. Эта суммарная информация как об особенностях квантовых ям и барьеров, так и о слое твердого раствора создает многочисленные версии интерпретации, полученных экспериментальных данных. До недавнего времени количественная характеристика особенностей организации наноматериала была затруднена, так как методы диагностики, хорошо зарекомендовавшие себя при разработке СД на основе гетероструктур A^3B^5 , характеризуют материал локально или интегрально, практически не отражая внутренних связей между частями сложной системы, то есть особенностей организации наноматериала. Такая возможность открывается при применении информационно-вероятностных методов мультифрактального анализа [14]. Эти методы, в отличие от традиционного фрактального анализа, используют не одну меру, а набор самоподобных мер и функций распределения, что позволяет количественно охарактеризовать особенности организации наноматериала с помощью таких мультифрактальных параметров, как уровень самоорганизации наноматериала, степень упорядоченности, нарушение общей и локальной симметрии [14]. Эти параметры могут быть получены из данных исследования поверхности слоев и приборных структур методами атомно-силовой микроскопии (АСМ) путем обработки математического множества, соответствующего изображению поверхности, методами мультифрактального анализа, заложенными в компьютерные программы [14, 15]. Согласно проведенным теоретическим и экспериментальным исследованиям, в целях количественной параметризации целесообразно использовать такие мультифрактальные характеристики, как обобщенные энтропии (размерности) Реньи D_q и упорядоченности Δ_q . По изменению этих

характеристик можно получать дополнительную информацию о темпах протекания процессов структурообразования, смене механизмов формирования структур и т.п.

Использование контроля характера организации наноматериала светоизлучающих структур InGaN/GaN с применением мультифрактального анализа дает возможность выяснить особенности излучательной и безызлучательной рекомбинации в этих материалах [16, 17]. Таким образом, можно исследовать причины падения внешней квантовой эффективности и деградации СД для решения задач энергосберегающего освещения.

Литература

1. Бахтизин Р.З. Голубые диоды // Соровский образовательный журнал. 2001. № 3. С. 75.
2. Закгейм А.Л. Светодиодные системы освещения: энергоэффективность, зрительное восприятие, безопасность для здоровья (обзор) // Светотехника. 2012. № 6. С. 12–21.
3. Шуберт Ф. Светодиоды: пер. с англ. А.Э. Юновича. 2-е изд. М: ФИЗМАТЛИТ, 2008.
4. Юнович А.Э. Светодиоды и их применение для освещения. М.: Знак, 2011.
5. Nakamura S., Senoh M., Iwasa N. High-power single-quantum-well structure blue and violet light-emitting diodes // Appl. Phys. Lett. 1995. № 13. P. 1868.
6. CREE LED Lighting. URL: <http://www.cree.com/Lighting/Document-Library> (дата обращения: 21.10.2014).
7. Degave F., Ruterana P., Nouet G. Metalorganic chemical vapor deposition growth of a GaN epilayer on an annealed GaN buffer layer // Phys. stat. sol.(c). 2002. P. 546.
8. Lafford T.A., Parbrook P.J. Direct, independent measurement of twist and tilt mosaic as function of thickness in epitaxial GaN // Phys. stat. sol.(c). 2002. P. 542.
9. Peculiarities of extended defect system in III-nitrides with different degrees of order of mosaic structure / A.V. Ankudinov [et al.] // Physica B. 2003. P. 462.
10. Karpolnek D., Keller S., Speck J.S. Structural evolution in epitaxial metalorganic chemical vapor deposition GaN films on sapphire // Appl. Phys. Lett. 1995. № 11.
11. Gibar P. Metal organic vapour phase epitaxy of GaN and lateral overgrowth // Rep. Prog. Phys. 2004.
12. Karpov S.Yu., Makarov Yu.N. Dislocation effect on light emission efficiency in gallium nitride // Appl. Phys. Lett. 2002. P. 4721.
13. Li D.S., Chen H., Yu H.B. Dependence of leakage current on dislocations in GaN-based Light-emitting diodes // J. of Appl. Physics. 2004. P. 1111.
14. Встовский Г.В., Колмаков А.Г., Бунин И.Ж. Введение в мультифрактальную параметризацию структур материалов. Ижевск: НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика», 2001. С. 116.
15. Emtsev V.V., Kolmakov A.G., Kryzhanovsky A.D. A new approach to analysis of mosaic structure peculiarities of gallium nitride epilayers // Physica B: Physics of Condensed Matter. 2001.
16. Динамика излучательной и безызлучательной рекомбинации синих светодиодов: тезисы докладов IV-й Всерос. конф. «Нитриды галлия, индия и алюминия – структуры и приборы» / А.А. Грешнов [и др.]. М.: 2007. С. 27.
17. Влияние уровня легирования кремнием и характера наноструктурной организации на падение с током внешней квантовой эффективности InGaN/GaN-светодиодов / Б.Я. Бер [и др.] // Физика и техника полупроводников. 2011. № 3. С. 425–431.