Источник белого света с лазерным возбуждением люминофора

О.Р.Абдуллаев, А.В.Алуев, Ю.Л.Ахмеров, Н.В.Коурова, М.В.Меженный, А.А.Чельный

Рассмотрены принципы работы источника белого света на основе удаленного люминофора из алюмоиттриевого граната, легированного церием (YAG: Ce^{3+}), люминесценция которого возбуждалась лазерным излучением «синего» диодного лазера. Исследованы колориметрические и фотометрические характеристики разных видов люминофоров в зависимости от толщины пленки люминофорного покрытия. При мощности лазерного излучения 1 Вт на длине волны 445 ± 3 нм в непрерывном режиме были достигнуты значения светового потока 165 лм, коррелированной цветовой температуры 5595 К, индекса цветопередачи 66, цветовых координат x = 0.3303, y = 0.3427, световой эффективности 165 лм/Вт и световой отдачи 30 лм/Вт. Полученные результаты сопоставимы с аналогичными параметрами промышленно выпускаемых «белых» светодиодов.

Ключевые слова: полупроводниковый лазер, диодный лазер, волоконно-оптический модуль, люминофор, люминесценция, фотолюминесценция.

1. Введение

Объем рынка светотехнической продукции на основе «белых» светодиодов растет с каждым годом, что приводит к вытеснению традиционных источников света (лампы накаливания, люминесцентные лампы). Эта продукция находит применение в автомобильной промышленности, бытовом, архитектурном, промышленном и декоративном освещении, а также в медицине (стоматология и офтальмология). По сравнению с традиционными источниками света белые светодиоды имеют ряд существенных преимуществ: малые габариты, малое потребление электрической энергии, большой срок службы (до 50000 ч), высокая световая отдача.

Принцип работы белого светодиода основан на эффекте фотолюминесценции. Излучение «синего» светодиода проходит через слой люминофора, который находится в прозрачном компаунде. В качестве люминофора используется порошок алюмоиттриевого граната, легированного церием (YAG: Ce³⁺). Для улучшения светотехнических характеристик могут применяться смеси люминофоров. Часть излучения синего светодиода, проходя через слой люминофора, поглощается, возбуждая люминесценцию люминофора в желтой области спектра, другая его часть проходит не поглотившись. Результирующее излучение воспринимается человеческим глазом как белый свет и характеризуется цветовыми координатами х и у принятыми Международной комиссией по освещению (CIE) в 1931 г., коррелированной цветовой температурой (ССТ) и индексом цветопередачи (СП) [1].

Синие светодиоды изготавливаются из гетероструктур на основе нитридных соединений III группы. Они

Поступила в редакцию 4 апреля 2017 г., после доработки – 28 июня 2017 г.

имеют несколько квантовых ям в активной области. Несмотря на свои достоинства, синий светодиод как полупроводниковый прибор имеет фундаментальные недостатки, которые ограничивают максимальное значение выходной оптической мощности одного излучателя (чипа светодиода):

1. Спонтанное излучение, образующееся в результате рекомбинации электронно-дырочных пар, распространяется во всех направлениях. Из-за эффекта полного внутреннего отражения бо́льшая часть излучения остается в кристалле [1], что снижает внешнюю квантовую эффективность.

2. При высоких уровнях инжекции носителей заряда, превышающих плотность тока 15–17 А/см², наблюдается снижение внутренней квантовой эффективности – явление, получившее название efficiency drop. Объясняется оно рядом причин: утечкой носителей заряда [2,3], ожерекомбинацией [4], нагревом активной области [5], неоднородностью состава активной области [6,7] либо совокупностью этих факторов.

В отличие от синих светодиодов, синие диодные лазеры таких недостатков не имеют. Лазерное излучение распространяется в волноводных слоях и падает на границу раздела лазерного кристалла и воздуха практически перпендикулярно, поэтому эффект полного внутреннего отражения не влияет на внешнюю квантовую эффективность и почти весь генерируемый свет может быть выведен во внешнюю среду при условии малых внутренних потерь. Кроме того, из-за чрезвычайно высокой скорости рекомбинации концентрация носителей в активной области лазера по достижении пороговых условий практически не изменяется с ростом тока накачки, поэтому внутренняя квантовая эффективность остается постоянной даже при плотностях тока, многократно превышающих пороговую.

Таким образом, диодные лазеры могут быть перспективными полупроводниковыми источниками излучения для возбуждения люминесценции люминофора в принципиально новых осветительных устройствах, что под-

О.Р.Абдуллаев, А.В.Алуев, Ю.Л.Ахмеров, Н.В.Коурова, М.В.Меженный, А.А.Чельный. Акционерное общество «Оптрон», Россия, 105187 Москва, ул. Щербаковская, 53; e-mail: yuri.akhmerov@yandex.ru

тверждается, в частности, ростом числа публикаций по этой тематике [8–15]. Использование синих диодных лазеров для светотехнической продукции может обеспечить их промышленный выпуск в объемах, сопоставимых с объемом выпускаемых диодных лазеров для систем записи-считывания информации (CD-R/CD-RW, DVD-R/ DVD-RW, Blu-ray Disk – BD).

Целью настоящей работы являлось исследование возможности применения классической технологии изготовления люминофорных покрытий для замены в системах освещения синих светодиодов синими диодными лазерами.

2. Эксперимент

Источником лазерного излучения служил диодный лазер NDB7875 фирмы Nichia, излучающий на длине волны $\lambda = 445 \pm 3$ нм в непрерывном режиме. На его основе изготавливался волоконно-оптический модуль с кварцевым волокном, имеющим диаметры сердцевины и оболочки соответственно 105 и 125 мкм и NA = 0.22. Коэффициент ввода лазерного излучения в волокно составил 84%. Измерение цветовых и фотометрических характеристик проводилось в непрерывном режиме при выходной оптической мощности волоконно-оптического модуля $P_{out} = 1$ Вт.

В качестве люминофора использовался порошок YAG:Ce³⁺ от разных отечественных производителей. Люминофор помещался в прозрачный компаунд из кремнийорганического соединения. Соотношение массовых долей люминофора и компаунда поддерживалось постоянным. Смесь люминофора и компаунда наносилась на поверхность колбы из оптически прозрачного материала, при этом изготавливались образцы с разной толщиной пленки люминофорного покрытия, которое покрывалось защитным слоем из кремнийорганического соединения.

На рис.1,a показана оптическая схема устройства. Дистальный торец кварцевого волокна волоконно-оптического модуля имеет разъем FC-PC, который соединяется с переходным фланцем. Во фланце размещена оптически прозрачная колба. На поверхность колбы наносились пленки исследуемых образцов. Переходной фланец изготавливался таким образом, чтобы угол расходимости лазерного излучения α на выходе из оптического во-



Рис.1. Оптическая схема источника белого света с лазерным возбуждением люминофора (*a*) и фотография этого источника при выходной оптической мощности лазерного излучения $P_{\text{out}} = 1$ Вт в непрерывном режиме.

Табл.1. Основные параметры исследуемых пленок люминофорных покрытий.

Образец	Тип люминофора	Производитель	Средний размер гранул (мкм)	Толщина слоя <i>h</i> (мм)
1	ФЛЖ-7-560	ООО «НПК "Люминофор"»	10	0.6
2				1.0
3				1.4
4	СДЛ-4000	НИИ «Платан» с заводом при НИИ	20	0.6
5				1.0
6				1.4
7	СДЛ-3500	НИИ «Платан» с заводом при НИИ	20	0.6
8				1.0
9				1.4

локна не имел ограничений. На рис.1, δ приведена фотография источника белого света при выходной оптической мощности $P_{\text{out}} = 1$ Вт в непрерывном режиме.

В табл.1 представлены данные о люминофоре, его производителе, среднем размере гранул и толщине люминофорного покрытия.

Измерение выходной оптической мощности волоконно-оптического модуля проводилось с помощью прибора PM-100 (ThorLabs). Спектральные характеристики, цветовые координаты x и y, ССТ и СRI регистрировались измерителем MK-350 (UPRTec). Световой поток Φ_v измерялся интегрирующей сферой TKA-KK1.

3. Результаты и их обсуждение

В табл.2 приведены результаты измерений цветовых координат и светотехнических характеристик люминофорных покрытий различной толщины, изготовленных на основе разных типов люминофоров.

На рис.2 представлены экспериментальные значения цветовых координат x и y для исследуемых образцов. Видно, что для образцов 1, 4 и 7, которые имели толщину люминофорного слоя $h_1 = 0.6$ мм, цветовые координаты соответствуют «холодному» белому свету со значением ССТ, превышающим 6600 К. Это можно объяснить тем, что пленка люминофорного покрытия была очень тонкой. В результате суперпозиции лазерного излучения, прошедшего через люминофорный слой без поглощения, и спонтанного излучения люминофора результирующее излучение в своем спектральном составе имело более интенсивную синюю компоненту. Об этом свидетельствует спектр результирующего излучения образца 1, представленный на рис.3,a.

Табл.2. Результаты измерений цветовых и светотехнических характеристик исследуемых образцов.

		*			
Образец	x	у	CCT (K)	CRI	$\Phi_{ m v}$ (лм)
1	0.2801	0.2773	7732	61	78.3
2	0.3115	0.3302	7000	62	92.4
3	0.4254	0.5105	3572	62	85.1
4	0.2899	0.2812	7352	65	135.3
5	0.3303	0.3487	5595	66	165
6	0.4075	0.4751	3950	64	142.8
7	0.2925	0.2875	7202	63	99.2
8	0.3415	0.3575	4172	64	128
9	0.3954	0.4495	3874	64	108.3



Рис.2. Экспериментальные значения цветовых координат x и y для образцов 1–9 (точки) и табличные значения цветовых координат абсолютно черного тела (сплошная кривая). Выделены области цветовых координат белого света, соответствующие различным ССТ.

На рис.3,*а* видны два спектральных максимума: первый находится в коротковолновой области в диапазоне 443–445 нм и соответствует спектру источника лазерного излучения, второй, более длинноволновый, расположен в желто-зеленой области спектра и соответствует спектру люминесценции люминофора на основе YAG: Ce³⁺.

В спектре образца 9 (рис.3, δ) интенсивность полосы, соответствующей люминесценции люминофора, значительно больше, чем в спектре образца 1. Схожие спектральные характеристики имели образцы 3 и 6. Толщина нанесенного люминофорного покрытия h_3 у образцов 3, 6 и 9 была одинакова и составляла 1.4 мм. Такое изменение соотношения интенсивностей спектральных составляющих в синей и желто-зеленой областях связано с большей толщиной люминофорного покрытия, приводящей к большему поглощению лазерного излучения по сравнению с образцами с толщиной покрытия $h_1 = 0.6$ мм. Цветовые координаты для образцов 3, 6 и 9 лежат в желтой области, значение ССТ составляло 3000–3500 К.

Образцы 2, 5 и 8 с толщиной люминофорного слоя $h_2 = 1$ мм имели цветовые характеристики, близкие к ана-



Рис.3. Спектры образцов 1 (a), 9 (б) и 5 (в).



Рис.4. Зависимости цветовых координат x (сплошные кривые) и y (штриховые кривые) для образцов 2, 5 и 8 от оптической мощности лазерного излучения P_{out} .

логичным характеристикам излучения абсолютно черного тела, при значениях ССТ, равных 6500, 5700 и 5000 К соответственно. Спектр результирующего излучения образца 5 представлен на рис.3,*в*.

В дальнейшем были исследованы зависимости цветовых координат и светотехнических характеристик образцов 2, 5 и 8 от выходной оптической мощности лазерного излучения. На рис.4 приведены результаты измерений цветовых координат цветности x и y в зависимости от оптической мощности лазерного излучения P_{out} . Видно, что значения цветовых координат уменьшаются при увеличении O_{out} . Это можно объяснить тем, что при увеличении оптической мощности лазерного излучения из-за эффекта Стокса увеличивается количество тепла, выделяемого в слое люминофора. Как следствие, происходит уменьшение интенсивности люминесценции люминофора и изменение спектра результирующего излучения.

На рис.5 представлены зависимости ССТ от оптической мощности лазерного излучения P_{out} . Наблюдается незначительное (в пределах 100 K) увеличение ССТ при увеличении P_{out} от 0.01 до 1 Вт для образцов 5 и 8. Для образца 2 при этом ССТ увеличивается от 5450 до 5700 К. Изменение цветовых координат и ССТ образца 2 свидетельствует о флуктуации спектрального состава результирующего излучения при увеличении P_{out} . Это может быть связано с неоднородностью размера гранул порошка люминофора ФЛЖ-7-560. В результате из-за эффекта Стокса гранулы меньшего размера будут нагреваться раньше и сильнее гранул большего размера. Выделение тепла приводит к усилению влияния процессов безызлучательной рекомбинации, что вызывает еще больший нагрев. Возникает эффект положительной обратной связи, приводя-



Рис.5. Зависимости ССТ образцов 2, 5 и 8 от оптической мощности лазерного излучения P_{out} .

щий к снижению внутренней и внешней квантовых эффективностей люминофора.

Также возможна неоднородность состава материала люминофора. Известно, что в системе Y₂O₃-Al₂O₃ могут образовываться три соединения: YAlO₃ (YAP), Y₂Al₅O₃ (YAG) и Y₄Al₂O₁₂ (YAM). При охлаждении расплава Y2O3-Al2O3 [16-18] помимо образования граната может происходить метастабильная кристаллизация эвтектического расплава. Кроме того, авторы [19] полагают, что легирующая примесь церия в монокристаллическом YAG может находиться в состоянии как Ce^{3+} , так и Ce^{4+} . Полоса поглощения YAG: Ce3+ совпадет с полосой поглощения YAG: Ce4+, однако процесс рекомбинации имеет безызлучательный характер. Данный эффект приводит к уменьшению результирующего светового потока вследствие уменьшения интенсивности синей компоненты в его спектре и одновременно вызывает дополнительный нагрев люминофора.

На рис.6 приведены зависимости CRI от выходной оптической мощности модуля P_{out} . Видно, что максимальное значение CRI составило 67 для образца 5, однако при увеличении P_{out} оно уменьшилось до 66. Минимальное значение CRI было равно 62 для образца 2.

Малую величину CRI (меньше 75) для всех исследуемых образцов можно объяснить отсутствием излучения в спектральных диапазонах 360–442 нм и 445–475 нм и малой интенсивностью спонтанного излучения люминофора в красной (650–780 нм) области спектра.

На рис.7 представлены люмен-амперные характеристики исследуемых образцов. Видно, что на начальном этапе при росте тока накачки световой поток не увеличивается, это свидетельствует об отсутствии генерации диодного лазера. При превышении порогового тока накачки, равного 0.2 А, световой поток увеличивается с ростом тока накачки, однако зависимость имеет нелинейный характер. Это можно объяснить наличием процессов безызлучательной рекомбинации. После превышения током накачки значения 0.4 А люмен-амперная характеристика становится линейной, а по достижении тока 0.9 А наблюдается ее насыщение.

На рис.8 приведены зависимости световой отдачи образцов от потребляемой электрической мощности. Видно, что на начальном участке (вблизи порога генерации диодного лазера) при небольшой выходной мощности лазерного излучения имеет место линейный рост световой отдачи при увеличении потребляемой электрической



Рис.6. Зависимости CRI образцов 2, 5 и 8 от оптической мощности лазерного излучения *P*_{out}.



2

Рис.7. Люмен-амперная характеристика образцов 2, 5 и 8.

0.6

0.8

1.0

1.2

Ток накачки (А)

1.4

0.4

80

60

40

20

0

0.2

мощности. По мере дальнейшего увеличения потребляемой мощности световая отдача продолжает увеличиваться, достигает максимума, а затем начинает уменьшаться. Максимальное значение световой отдачи составило 30 лм/Вт при потребляемой электрической мощности 4.2 Вт для образца 5, что соответствует току накачки 1.24 А. Это значение световой отдачи существенно превышает эффективность ламп накаливания и сопоставимо со световой отдачей промышленно выпускаемых светодиодных источников света.

Насыщение характеристик, представленных на рис.7 и 8 можно объяснить совокупностью следующих причин:

 уменьшением коэффициента ввода лазерного излучения в оптическое волокно из-за увеличения расходимости излучения в дальней зоне в плоскости, параллельной p-n-переходу, при увеличении тока накачки диодного лазера;



Рис.8. Зависимость световой отдачи образцов 2, 5 и 8 от потребляемой электрической мощности.

2) нагревом люминофора под действием лазерного излучения.

На основании изложенного выше можно предположить, что при реализации систем лазерного освещения традиционные технологии, применяемые для создания осветительных устройств на основе синих светодиодов, а именно использование смеси порошка люминофора и прозрачного компаунда, могут оказаться малоэффективными. Возможно, что наиболее перспективными будут системы лазерного освещения, изготовленные на основе монокристаллического алюмоиттриевого граната или люминесцирующей керамики, легированных церием (YAG:Ce³⁺). Поскольку монокристалл или керамика на основе YAG: Ce³⁺ имеет больший коэффициент теплопроводности, чем порошок люминофора, помещенный в компаунд, то возможно, что светотехнические характеристики данных осветительных устройств будут лучше характеристик, представленных в настоящей работе.

4. Заключение

Исследована возможность применения классической технологии изготовления люминофорных покрытий для создания систем освещения с возбуждением люминесценции люминофора лазерным излучением.

Показано, что при реализации систем освещения на основе возбуждения люминесценции люминофора лазерным излучением традиционные технологии, используемые для создания систем освещения на основе белых светодиодов, могут быть малоэффективными.

Исследованы основные светотехнические характеристики (цветовые координаты, ССТ и CRI) люминофорных покрытий, изготовленных на основе порошка YAG: Ce³⁺ от разных отечественных производителей.

При возбуждении люминесценции люминофора лазерным излучением, источником которого являлся волоконно-оптический модуль с выходной оптической мощностью 1 Вт, работающий в непрерывном режиме и излучающий на $\lambda = 445 \pm 3$ нм, были получены следующие характеристики: максимальное значение светового потока 165 лм, цветовые координаты x = 0.3303 и y = 0.3487, коррелированная цветовая температура 5595 К, индекс цветопередачи 66 и световая отдача 30 лм/Вт.

Полученные характеристики источника белого света на основе возбуждения люминесценции люминофора лазерным излучением близки к характеристикам промышленно выпускаемых источников белого света на основе светодиодов.

- 1. Шуберт Ф.Е. Светодиоды (М.: Физматлит, 2008).
- Rozhansky I.V., Zakheim D.A. *Phys. Status Solidi C*, 3, 2160 (2006).
 Kim M.H., Schubert M.F., Dai Q., Kim J.K., Schubert E.F., Piprek J.,
- Park Y. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 183507 (2007).
 Shen Y.C., Mueller G.O., Watanabe S., Gardner N.F., Munkholm A., Krames M.R. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 141101 (2007).
- Efremov A.A., Bochkareva N.I., Gorbunov R.I., Larinovich D.A., Rebane Y.T., Tarkhin D.V., Shreter Y.G. Semiconductors, 40, 605 (2006).
- Chichibu S., Azuhata T., Sota T., Nakamura S. Appl. Phys. Lett., 69, 4188 (1996).
- 7. Nakamura S. Science, 281, 956 (1998).
- Xu Y., Chen L., Li Y., Song G., Wang Y., Zhuang W., Long Z. Appl. Phys. Lett., 92, 021129 (2008).
- 9. Ryu H.-Y., Kim D.-H. J. Opt. Soc. Korea, 14 (4), 415 (2010).
- Kristin A.D., Cantore M., Nakamura S., DenBaars S.P., Seshardi R. AIP Advances, 3, 072107 (2013).
- 11. Wierer J.J. Jr., Jeffery Y., Tsao J.Y., Sizov D.S. *Laser Photonics Rev.*, 7, 963 (2013).
- 12. Ledru G., Catalano C., Dupuis P., Zissis G. *AIP Advances*, 3, 107134 (2014).
- Абдуллаев О.Р., Ахмеров Ю.Л., Меженный М.В., Чельный А.А. Патент РФ №165548; Бюллетень изобретений и полезных моделей, №29 (2016).
- Ахмеров Ю.Л., Иванов А.А., Флидер П.С., Чельный А.А. Патент РФ №168128; Бюллетень изобретений и полезных моделей, №2 (2017).
- Ахмеров Ю.Л., Иванов А.А., Флидер П.С., Чельный А.А. Патент РФ №169744; Бюллетень изобретений и полезных моделей, №10 (2017).
- 16. Cokayne B., Lent B. J. Cryst. Growth, 46, 371 (1974).
- 17. Caslavsy J.L., Viechnicki D.J. J. Mater. Sci., 15 (7), 1709 (1980).
- Брискина Ч.М., Румянцев С.И., Рыжков М.В., Сощин Н.П., Спасский Д.А. Светотехника, 5, 37 (2012).
- Wang L., Zhuang L., Xin H., Huang Y., Wang D. Open Inorg. Chem. J., 5, 12 (2015).