

全息技术制作二维光子晶体蓝宝石衬底 提高发光二极管外量子效率^{*}

林 瀚[†] 刘 守 张向苏 刘宝林 任雪畅

(厦门大学物理系 厦门 361005)

(2008 年 5 月 9 日收到 2008 年 6 月 6 日收到修改稿)

为了提高 GaN 基发光二极管(LED)的外量子效率,在蓝宝石衬底制作了二维光子晶体.衬底上的二维光子晶体结构采用激光全息技术和感应耦合等离子体(ICP)干法刻蚀技术制作,然后采用金属氧化物化学气相沉积(MOCVD)技术在图形蓝宝石衬底(PSS)上生长 2 μm 厚的 n 型 GaN 层,4 层量子阱和 200 nm 厚的 p 型 GaN 层,形成 LED 结构.衬底上制作的二维光子晶体为六角晶格结构,晶格常数为 3.8 μm ,刻蚀深度为 800 nm. LED 器件光强输出测试结果显示,在 PSS 上制作的 LED(PSS-LED)的发光强度普遍高于蓝宝石平面衬底上的 LED,平均强度提高了 100%.在 PSS 和蓝宝石平面衬底上 GaN 层的(0002)晶面采用 X 射线测得的衍射摇摆曲线显示,PSS 上的 GaN 晶体质量并没有提高,表明 PSS-LED 外量子效率显著提高的原因不是由于内量子效率的提高,而可能是由于二维光子晶体产生的散射作用导致提取效率的提高所致.

关键词:全息,发光二极管,图形蓝宝石衬底,外量子效率

PACC:4240M,7860F,7850G

1. 引 言

目前,发光二极管(LED)由于其节能、环保、长寿命的特性引起了人们的广泛关注,是未来社会所需要的新型照明光源.其中,GaN 基 LED 作为蓝光照明材料,其优势尤其明显:GaN 基 LED 不但可以作为白光 LED 的激发光源,而且可以作为液晶显示的背光源、大幅广告和夜景光源等.但是,目前 GaN 基 LED 因亮度太低还无法广泛应用,其主要根源是器件的内量子效率和光提取效率很低,导致外量子效率低.其很低的内量子效率是由于 GaN 材料目前无法找到适配的衬底进行生长,其与蓝宝石衬底的晶格失配为 14%,所以长成的 GaN 材料缺陷较多,缺陷密度较大^[1].当电流注入的时候,缺陷吸收了部分电流而不能有效产生载流子,使注入效率下降.同时,产生的载流子在缺陷能级无辐射复合,而且载流子复合生成的光能容易被缺陷吸收,产生热量.光提取效率低主要是由于 LED 材料与外界材料的折射率相差很大,存在界面全反射作用.LED 发射的大

部分光在界面被反射回来,形成波导光被困在器件内部,经过多次反射最终被半导体吸收,转化为热能.这不但造成了能量的大量损耗,而且由于 LED 经常工作在高温状态,使 LED 的使用寿命缩短.在 LED 中制作二维光子晶体结构来提高 LED 的外量子效率是近年来的研究重点之一.目前采取的方法主要有以下三种:一是在 p 型 GaN 材料^[2,3]或铟锡氧化物(ITO)层^[4]表面制作二维结构来提高器件的光提取效率;二是在蓝宝石衬底的底面制作类似透镜阵列的结构^[5]来提高 LED 底面的光提取效率;三是在蓝宝石衬底制作二维结构,然后生长 GaN 材料制作成 LED 器件^[6].研究表明,第三种方法同时具有提高内量子效率和提取效率的效果^[7].在第三种方法中,衬底图形的制作大多采用半导体工艺的光刻法,先将图形制作在衬底表面的遮挡层上,然后用干刻法^[8]或湿刻法^[9]将图形转移到蓝宝石衬底上.采用光刻曝光的方法必须先制作光刻掩模版,而一块光刻掩模版只能对应一个周期的结构,不利于不同周期的衬底结构制作.此外,光刻工艺分辨率比较低,不利于小周期图形的制作.

^{*} 福建省青年人才创新项目(批准号 2007F3099)资助的课题.

[†] E-mail: hanlin@xmu.edu.cn

本研究采用全息技术代替光刻法在蓝宝石衬底上制作二维光子晶体图形. 所采用的全息技术具有光学系统简单、制作过程快速、能用一次曝光制作大面积光子晶体图形等优点. 此外, 还能靠调整光路参数来实现不同周期图形的制作, 具有很强的实用性和很低的结构制作成本. 实验中采用全息曝光加感应耦合等离子体(ICP)刻蚀技术在蓝宝石衬底上制作二维光子晶体结构. 所制作的光子晶体为六角晶格结构, 晶格常数为 $3.8 \mu\text{m}$, 在衬底中的刻蚀深度为 800 nm . 在图形蓝宝石衬底(PSS)上采用金属氧化物化学气相沉积(MOCVD)法制作 GaN 基蓝光 LED 器件. 器件输出测试结果显示, 在 PSS 上制作的 LED (PSS-LED) 的发光强度普遍高于蓝宝石平面衬底上的 LED, 平均亮度提高了 100% . GaN 的(0002)晶面 X 射线衍射摇摆曲线显示, 在 PSS 上生长的 GaN 晶体的质量没有提高. 器件外量子效率提高的原因可能是由于二维结构产生的散射作用导致提取效率的提高.

2. 实 验

2.1. 蓝宝石图形衬底的制作

首先在蓝宝石衬底上用甩胶机涂布一层厚度大约为 $2.8 \mu\text{m}$ 的美国产 AZ500 型正性光刻胶, 然后采用图 1 所示的全息光学系统在光刻胶上曝光, 制作光子晶体图形. 采用的光源是 He-Cd 激光器发出的波长为 442 nm 的激光. 激光束经过扩束滤波器扩束后, 再经过准直透镜形成平行光照射在全息光学元件(HOE)上. HOE 是由三个两两夹角为 120° 并具有相同周期的光栅组成, 三个光栅的一级衍射光相互干涉

形成二维六角晶格图形. 图形的晶格常数 D 取决于三束衍射光相对于系统光轴的夹角 θ , 可表示为

$$D = \frac{\lambda}{\sqrt{3} \sin \left[\arccos \left(1 - \frac{3 \sin^2 \theta}{2} \right) / 2 \right]}, \quad (1)$$

式中 θ 为光栅的一级衍射角. 众所周知, 光栅的衍射角由光栅周期决定, 所以只要控制 HOE 上光栅的周期, 即可获得所需晶格常数的二维六角晶格图形. 因此采用图 1 所示的光学系统, 可以很容易地制作不同周期的二维图形. 此外, HOE 上光栅的面积决定了一次曝光所制作的二维结构的面积, 所以面积为几个平方英寸的二维图形可以用一次曝光获得. 这十分有利于实现工业化的低成本、大批量制作.

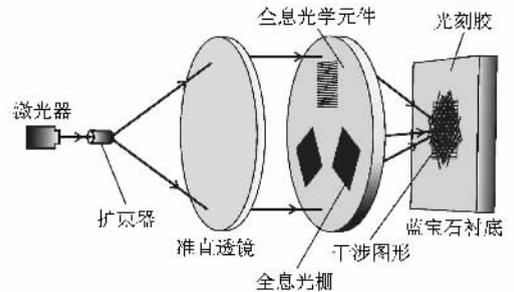


图 1 在光刻胶上制作二维图形的全息光学系统示意图

将涂有光刻胶的蓝宝石衬底放在三束光的干涉区域中, 衬底平面与系统光轴相垂直, 衬底的解理面与二维晶格图形的一组晶列方向成 30° 角. 由于 GaN 晶体的解理面与蓝宝石衬底的解理面相差 30° , 因此所制作的光子晶体的一组晶列与 GaN 晶体的解理面方向相同. 实验中所用的样品为半圆形衬底, 即 2 英寸直径的蓝宝石衬底片的 $1/2$. 曝光时采用遮挡方式只让一部分衬底受到曝光, 这样可以在同一片衬

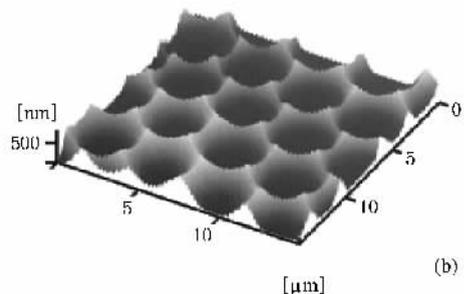
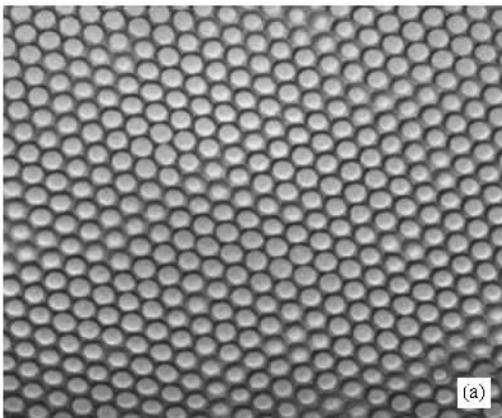


图 2 PSS 的显微照片(结构晶格常数为 $3.8 \mu\text{m}$, 刻蚀深度 800 nm) (a) PSS 的光学显微镜照片 (b) PSS 的 AFM 照片

底上制作两种 LED(PSS-LED 和普通 LED),方便进行比较.曝光以后的衬底经过显影,在光刻胶上产生二维六角光子晶体结构,晶格常数为 $3.8 \mu\text{m}$. 结构晶格格点的位置为空气圆孔,圆孔穿透整个胶层.然后对衬底进行 ICP 刻蚀,刻蚀深度为 800 nm . 图 2 是 PSS 的显微照片,其中图 2(a)是光学显微镜拍摄的,显示 PSS 上的结构均匀;图 2(b)是在 $15 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$ 面积上获取的原子力显微镜(AFM)照片,显示圆孔壁有倾斜,圆孔直径随着深度增大而略变小.

2.2. GaN 基 LED 的制作

采用 MOCVD 外延技术在 PSS 上制作 LED 器件.先生长一层厚度为 $2 \mu\text{m}$ 的 n 型 GaN,再生长 4 个周期的 InGaN/GaN 量子阱结构,最后生长厚度约为 200 nm 的 p 型 GaN 层.外延生长完后,采用通常

域为 p 电极.由于在衬底上生长的外延层很薄,从器件表明仍可以看到制作在衬底上的图形结构.图 4 是整个器件的截面示意图.

3. 实验结果及分析

发光强度分布测试表明:在 20 mA 注入电流下,PSS-LED 的发光强度普遍远高于未制作结构区域的普通 LED 的发光强度.PSS-LED 的最高发光强度为 65 mcd ,而普通 LED 的最高发光强度为 50 mcd ,最高发光强度相比提高了 30% .将芯片中所有 PSS-LED 的平均亮度(55 mcd)与所有普通 LED 的平均亮度(27 mcd)比较,可得 PSS-LED 的平均亮度提高了 100% .分别在样片的 PSS 区域和未做结构的区域取一个中等亮度的 LED 进行“发光强度-电流”曲线测试,得到的结果示于图 5.图中三角形代表衬底未做结构的 LED,圆点代表 PSS-LED.图 5 表明,在不同的注入电流下,PSS-LED 的发光强度都远高于普通 LED.

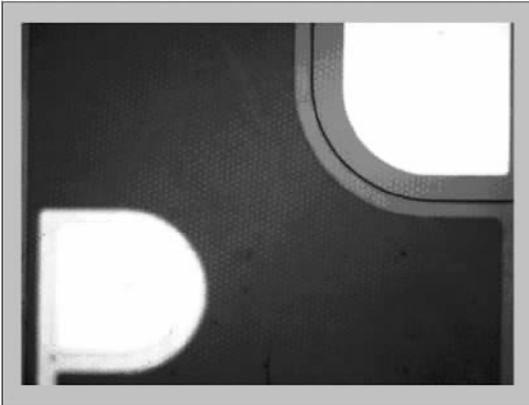


图 3 制作完成的单个 LED 器件的光学显微镜照片两个白色区域分别为两个电极

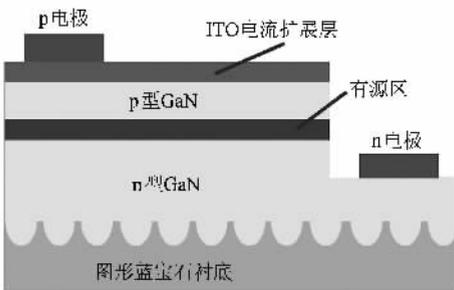


图 4 PSS-LED 的截面示意图

的半导体光刻法刻出电极台面,然后在 p 型 GaN 上采用真空镀膜方法制作一层 250 nm 厚的 ITO 层作为电流扩展层,再制作上 p 电极和 n 电极.整个器件就制作完成.图 3 是单个 LED 的光学显微镜照片,其中右上角的白色区域为 n 电极,左下角的白色区

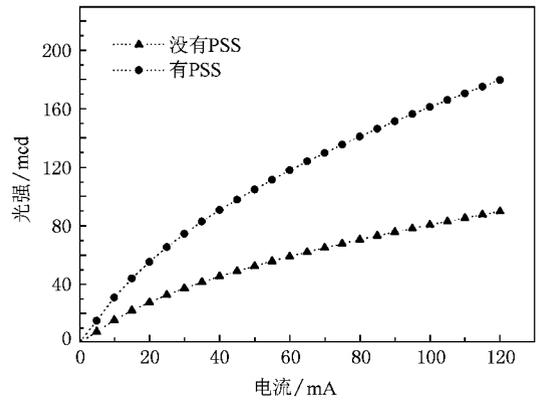


图 5 LED 光输出相对注入电流的变化曲线

LED 的发光强度提高,表明 LED 的外量子效率提高了.LED 的外量子效率取决于 LED 的内量子效率和光提取效率,并存在以下关系:

$$\eta_{\text{ext}} = \eta_{\text{int}} \times \eta_{\text{lee}}, \quad (2)$$

其中 η_{ext} , η_{int} 和 η_{lee} 分别为外量子效率、内量子效率和光提取效率.从(2)式可知,LED 内量子效率或提取效率的提高都会导致 PSS-LED 外量子效率的提高.为了分析本实验获得 PSS-LED 外量子效率提高的原因,我们首先检测 PSS 上的 GaN 晶体质量是否有改变,如果晶体质量提高了,则表明内量子效率有提高.检测方法是采用 X 射线双晶衍射仪来获取 GaN 晶体在(0002)面的衍射强度的半峰全宽

(FWHM),以了解其位错情况是否有改善.

图 6 是在室温下对 GaN 晶体(0002)面测得的 X 射线衍射摇摆曲线,图中实线代表生长在 PSS 上的 GaN 晶体,虚线代表生长在平面衬底的 GaN 晶体. 二条曲线显示生长在 PSS 上的 GaN 晶体的半峰全宽为 256 arcsec,而生长在平面衬底上的 GaN 晶体的半峰全宽为 232 arcsec.两种 GaN 晶体的半峰全宽十分接近,证明生长在 PSS 上的 GaN 晶体的质量没有提高.由此可以得出结论,实验中所获得的 PSS-LED 外量子效率的提高不太可能是由于内量子效率的提高所致,而可能是光提取效率的提高所致.

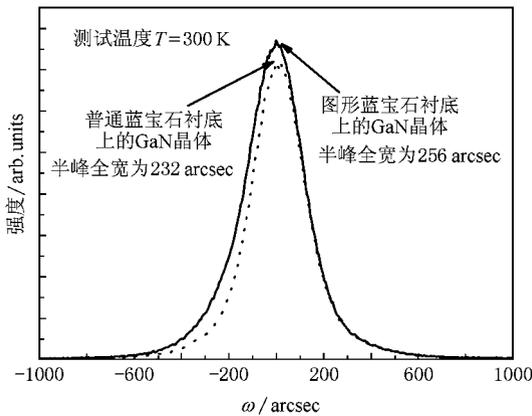


图 6 在 PSS 上生长的 GaN 晶体和在无结构衬底上生长的 GaN 晶体在(0002)面的 X 射线摇摆曲线

二维六角晶格结构可以看作是由三组相隔 120° 的相同光栅构成,光栅周期 d 与晶格常数 D 的关系为^[10] $d = D \cdot \sin 60^\circ$. 本实验中 PSS 结构的晶格常数为 $3.8 \mu\text{m}$,所以相当于有三组周期为 $3 \mu\text{m}$ 的光栅.对于普通 LED,从有源区发出的光到达“n 型 GaN/衬底”界面时,由于 GaN 的折射率($n_1 = 2.4$)大于蓝宝石的折射率($n_2 = 1.76$),入射角大于全反射角($\varphi_{\text{TR}} = 52.4^\circ$)的光在“n 型 GaN/衬底”界面被反射回来,形成波导光. PSS 上的结构有可能对光产生散射或衍射作用,从而改变光的传播角度,使波导光射出 LED. 从衍射理论可知,光栅周期必须小于某一最大

值才会对波导光产生衍射.光栅周期最大值 d_{max} 为

$$d_{\text{max}} = \frac{\lambda}{n_1 \sin \varphi - n_2}, \quad (3)$$

其中 n_1 是 GaN 的折射率, n_2 是蓝宝石衬底的折射率, φ 为波导光入射到界面的角度($\varphi \geq \varphi_{\text{TR}}$), λ 为光波长.利用(3)式计算得知,我们在衬底制作的结构($d = 3 \mu\text{m}$)只对入射角在 52.4° — 59° 之间的波导光起衍射作用.所以 PSS 结构对波导光产生衍射导致提取效率提高的作用不明显.

基于以上分析,本实验获得明显外量子效率提高的原因很可能是由于 PSS 中的二维结构对光产生的散射作用,使原来被“n 型 GaN/衬底”界面限制的波导光改变了传播角度,使得其中一部分可以从 LED 表面射出,提高了 LED 的提取效率.

4. 结 论

本研究在蓝宝石衬底上采用全息技术和 ICP 刻蚀法制作了晶格常数为 $3.8 \mu\text{m}$ 、深度为 800 nm 的二维六角晶格结构,并采用 MOCVD 法在 PSS 上制作了蓝光 GaN 基 LED. 输出测试显示,在 20 mA 注入电流下,PSS 区域的 LED 平均发光强度比普通 LED 区域的平均发光强度提高了一倍. X 射线衍射分析表明,PSS 上的 GaN 晶体的质量没有提高,意味着本实验制作的 PSS-LED 的外量子效率的提高不是由于内量子效率的提高,而有可能是由于衬底结构对光产生散射,导致提取效率的提高.采用全息光学系统可以仅用一次曝光在蓝宝石衬底上制作大面积二维晶格结构,并可方便地改变晶格常数,有利于大批量低成本的工业化生产.

本实验只在蓝宝石衬底制作了一种二维结构,寻找更佳的结构周期、深度和形状,有可能进一步提高 LED 的外量子效率.

作者感谢厦门三安光电股份有限公司帮助进行衬底 ICP 刻蚀、电极制作和输出测试.

- [1] Kang J Y ,Huang Q S ,Ogawa T 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1372 (in Chinese) [康俊勇、黄启圣、小川智哉 1999 物理学报 **48** 1372]
- [2] Ryu H Y ,Lee Y H ,Sellin R L ,Bimberg D 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3573
- [3] Li Y ,Zheng R S ,Feng Y C ,Li J ,Niu H B 2006 *Chin. Phys.* **15** 702

- [4] Lin H ,Zhang X S ,Liu S ,Ren X C 2008 *Proc. SPIE* **6832** 683203
- [5] Khizar M ,Fan Z Y ,Kim K H ,Lin J Y ,Jiang H X 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 173504
- [6] Yamada M ,Mitani T ,Narukawa Y ,Shioji S ,Niki I ,Sonobe S ,Deguchi K ,Sano M ,Mukai T 2002 *J. Appl. Phys.* **41** L1431
- [7] Cuong T V ,Cheong H S ,Kim H G ,Hong C H ,Suh E K ,Cho H K ,

- Kong B H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 131107
- [8] Wang W K ,Wuu D S ,Lin S H ,Han P ,Horn R H ,Hsu T C ,Huo D C ,Jou M J ,Yu Y H ,Lin A 2005 *IEEE J. Quantum Electron.* **41** 1403
- [9] Lee Y J ,Hwang J M ,Hsu T C ,Hsieh M H ,Jou M J ,Lee B J ,Lu T C ,Kuo H C ,Wang S C 2006 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **18** 1152
- [10] Zhang X S ,Liu S ,Ren X C 2006 *Proc. SPIE* **6352** 635230

Enhanced external quantum efficiency of light emitting diodes by fabricating two-dimensional photonic crystal sapphire substrate with holographic technique^{*}

Lin Han[†] Liu Shou Zhang Xiang-Su Liu Bao-Lin Ren Xue-Chang

(*Department of Physics ,Xiamen University ,Xiamen 361005 ,China*)

(Received 9 May 2008 ; revised manuscript received 6 June 2008)

Abstract

Investigation in fabricating two-dimensional (2D) photonic crystal (PC) on sapphire substrates for enhancing external efficiency of GaN based light emitting diodes (LEDs) is presented. 2D-PC was fabricated on a sapphire substrate using holographic lithography and inductively coupled plasma (ICP) dry etching. LEDs with 2 μm thick *n*-GaN layer ,four pairs of InGaN/GaN quantum well structures and 200 nm thick *p*-GaN layer were grown on the patterned sapphire substrate (PSS) by metal organic chemical vapor deposition (MOCVD). The PC fabricated on PSS has 2D hexagonal lattice pattern ,with 3.8 μm lattice constant and 800 nm depth. LED output measurement shows 100% increase in the average luminous intensity of PSS-LEDs compared with that of conventioanl LEDs. The measured X-ray rocking curves of (0002) diffraction for GaN layers grown on patterned and non-patterned sapphire substrates indicate that the quality of GaN crystal grown on PSS is not improved ,which implies that the large enhancement of external quantum efficiency of PSS-LED is not caused by the increase in internal efficiency but possibly by the increase in extraction efficiency ,which results from the scattering of the PSS.

Keywords : holography , light emitting diodes , patterned sapphire substrate , external quantum efficiency

PACC : 4240M , 7860F , 7850G

^{*} Project supported by the Program of Youth Scientific Innovation Talents of Fujian Province ,China (Grant No. 2007F3099).

[†] E-mail : hanlin@xmu.edu.cn