

硅基板和铜基板垂直结构GaN基LED变温 变电流发光性能的研究*

黄斌斌 熊传兵[†] 张超宇 黄基锋 王光绪 汤英文 全知觉 徐龙权
张萌 王立 方文卿 刘军林 江风益

(南昌大学国家硅基 LED 工程技术研究中心, 南昌 330047)

(2014年7月7日收到; 2014年7月22日收到修改稿)

本文将硅(Si)衬底上外延生长的氮化镓(GaN)基发光二极管(LED)薄膜剥离转移到新的硅基板和紫铜基板上, 并获得了垂直结构的LED芯片, 对其变温变电流电致发光(EL)特性进行了研究。结果表明: 当环境温度不变时, 在13 K低温状态下铜基板芯片的EL波长始终大于硅基板芯片约6 nm, 在300 K状态下随着驱动电流的加大铜基板芯片的EL波长会由大于硅基板芯片3 nm左右而逐渐变为与硅基板芯片重合; 当驱动电流不变时, 环境温度由13 K升高到320 K, 两种基板芯片的EL波长随温度升高呈现S形变化并且波谱逐渐趋于重合; 在100 K以下温度时铜基板芯片的Droop效应比硅基板芯片明显, 在100 K以上温度时硅基板芯片的Droop效应比铜基板芯片明显。可能是由于两种芯片的基板具有不同的热膨胀系数和热导率导致了其变温变电流的EL特性不同。

关键词: GaN, 热膨胀系数, 内量子效率, 热导率

PACS: 78.60.Fi, 78.66.Fd, 68.65.fg, 62.40.+i

DOI: 10.7498/aps.63.217806

1 引 言

目前, GaN发光二极管芯片有三条技术路线可以实现, 它们分别是: 蓝宝石、碳化硅和硅衬底技术路线, 其中蓝宝石衬底技术路线的市场占有率最大, 碳化硅衬底技术路线市场占有率为居中, 硅衬底技术路线市场占有率最小, 但它起步最晚、研究最热、进步最快^[1,2]。GaN基LED芯片具有多种结构形式, 其中最主要的三种结构形式为: 外延薄膜不剥离转移的同侧电极结构和倒装焊结构芯片, 以及LED薄膜从外延衬底剥离转移到新的支撑基板上的薄膜型结构芯片。将硅衬底上外延的GaN基LED薄膜压焊转移到新的基板上不但可以释放外延膜的张应力而且可以避免硅衬底对可见光的吸收, 所以实用化的硅衬底LED芯片均是采用LED薄膜剥离转移技术所获得的垂直结构芯片^[3,4]。尽

管目前铜基板和硅基板的GaN薄膜型LED芯片均已实现商品化^[3-5], 然而当GaN基LED薄膜处在不同基板上时其光电性能与基板的热膨胀系数和热导率之间的关联性研究尽然还是空白, 人们还不清楚当同一结构的LED薄膜转移到何种特性的基板上时, 其性能最佳。

本文将外延结构相同的硅衬底GaN基LED薄膜分别转移到硅基板和紫铜基板上, 获得了垂直结构芯片, 并对两种芯片的变温变电流的发光特性进行了一定研究。

2 实 验

实验所用的硅衬底GaN基外延片是在英国Thomans Swan 6片MOCVD系统上外延生长的, 生长方法已有报道^[6,7]实验时, 同一外延片分成两

* 国家自然科学基金(批准号: 51072076, 11364034, 61334001)、国家高技术研究发展计划(批准号: 2011AA03A101, 2012AA041002)、国家科技支撑计划(批准号: 2011BAE32B01)资助的课题。

† 通讯作者。E-mail: xcbxcbx@163.com

半, 分别将LED薄膜转移至硅基板和紫铜基板上, 并获得垂直结构发光器件。两种样品除了支撑基板不一样外, 其器件制作工艺一致, 芯片面积为 40×40 mil芯片制造过程已有报道^[4]。

本文分别测试了两种不同基板芯片的变温变电流EL, 变温范围为13—320 K, 变电流范围为0.01—400 mA 恒流电源为KEITHLEY 2635、光谱仪为Compact Array Spectrometer (CAS) 140 CT、

低温装置为10 K氦制冷变温装置。

3 结果与讨论

3.1 不同温度的变电流EL光谱分析

图1为硅基板和铜基板LED芯片不同温度的变电流EL光谱, 其环境温度分别为300 K, 200 K, 80 K, 13 K, 如图1(a)—(d)。

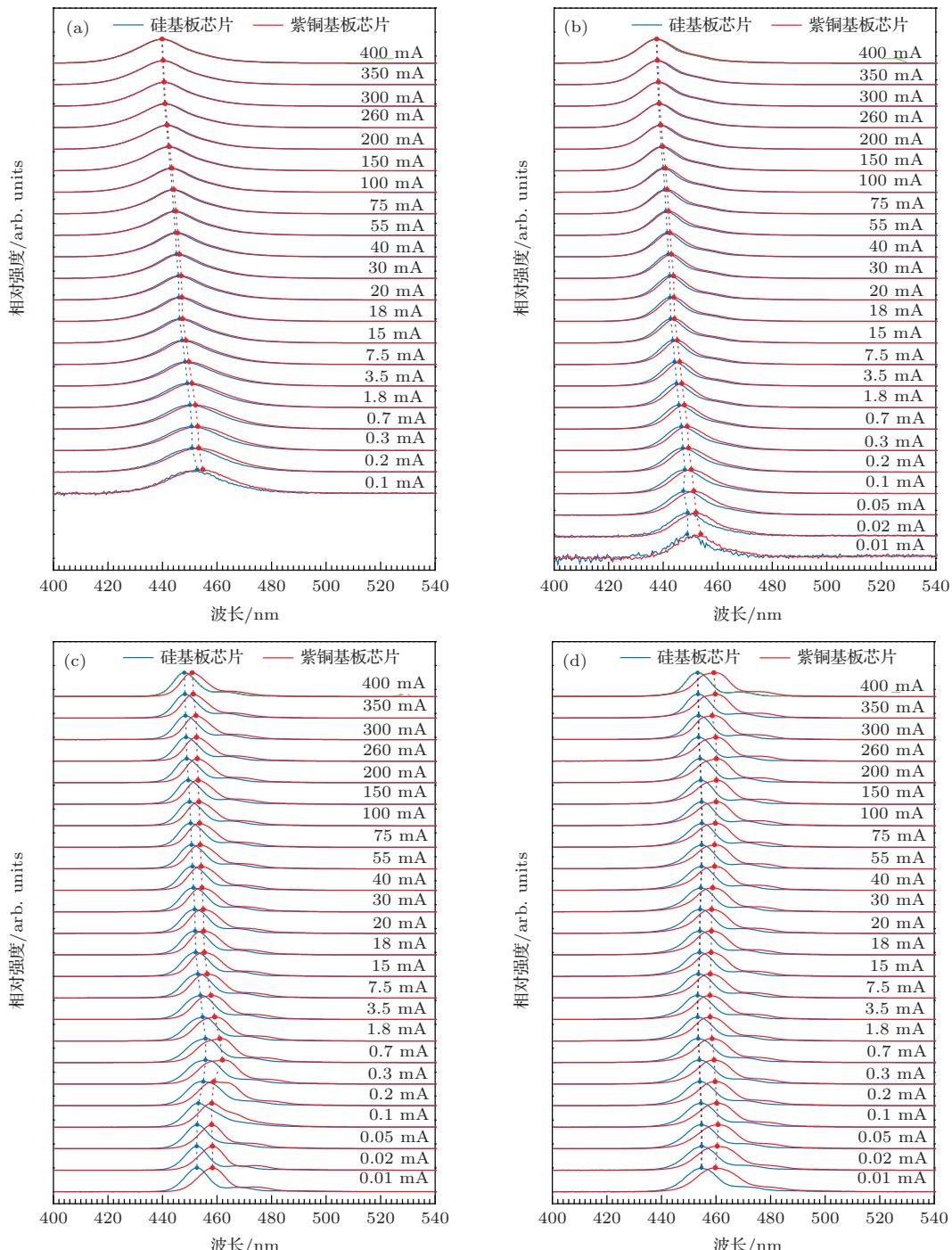


图1 (网刊彩色) 硅基板和铜基板LED芯片不同温度的变电流EL光谱 (a) 300 K时的变电流光谱; (b) 200 K时的变电流光谱; (c) 80 K时的变电流光谱; (d) 13 K时的变电流光谱

从图1可以看出: 1) 在300 K时, 两种基板芯片的峰值波长在各电流时均相差较小。随着温度的降低, 紫铜基板芯片的EL谱峰值波长在各电流时均大于硅基板芯片, 温度越低波长相差越显著, 300 K小于200 K, 200 K小于80 K, 80 K小于13 K; 2) 在300 K和200 K时, 小电流情况下紫铜基板芯片的峰值波长大于硅基板芯片, 随着驱动电流的增加两种基板芯片的峰值波长差值逐渐变小, 当400 mA时EL光谱基本重合两种基板的芯片的EL谱峰值波长均是随电流增加而单调递减; 3) 在80 K和13 K时, EL波长随电流的变化规律与300 K和200 K时相比具有显著的不同第1个不同是, 在13 K和80 K时, 两种基板芯片其EL谱随着电流的增大始终不会重合。第2个不同是, 两种基板的芯片的EL谱峰值波长随电流的增加不是单调变化的, 且其EL谱峰值波长差值随电流的增加呈现先减小后增大的趋势。

本文两种芯片的制造工艺是一致的, 所不同的是两种基板的热膨胀系数和热导率。实验中我们用HRXRD测试了室温时GaN薄膜从外延衬底剥离转移到新基板前后的应力变化, 转移到新基板后GaN薄膜在硅衬底上受到的张应力均得到释放, 新的硅基板上的GaN薄膜受到较小的张应力, 紫铜基板的GaN薄膜受到较小的压应力, 对发光波长起决定作用的共格生长的量子阱的阱层受到的压应力铜基板芯片大于硅基板芯片, 测试结果将另有报道。

在室温300 K和200 K小电流情况下: 铜基板芯片的EL谱峰值波长大于硅基板芯片, 本文归因为: 由于铜基板芯片的LED薄膜发光阱层的压应力大于硅基板芯片, 其压应力导致的能带倾斜^[8-11]程度大于硅基板芯片, 故而铜基板芯片EL谱峰值波长大于硅基板芯片。在室温300 K和200 K大电流情况下: 随着驱动电流的加大, 由于带填充效应屏蔽阱层的极化电场^[9,12]导致两种芯片的EL谱逐渐趋于重合; 同时, 铜基板的热膨胀系数大于硅基板的热膨胀系数, 以及GaN的热膨胀系数小于铜基板大于硅基板, 随着驱动电流的增加, 芯片的自加热效应更加明显, 器件的温度逐渐升高, 可能会导致铜基板芯片发光阱层的压应力变小, 从而也会使两种芯片发光阱层的应力状态逐渐趋于一致, 导致EL光谱趋于重合。

同一驱动电流情况下, 温度越低两种基板芯片的EL谱峰值波长相差越显著, 本文归因为: 由于

铜基板的热膨胀系数大于GaN, GaN的热膨胀系数大于硅基板, 随着温度的降低, 铜基板芯片的发光阱层受到的压应力增大, 硅基板芯片的发光阱层受到的压应力减小, 导致两种基板芯片的发光阱层能带倾斜程度差值加大, 从而两种基板芯片的EL谱峰值波长温度越低相差越显著。

在300 K和200 K, 两种基板芯片的EL谱随着电流的增加会趋于重合, 然而在80 K和13 K, 两种基板芯片的EL谱随着电流的增加不会重合。本文归因为: 尽管随着驱动电流的增加芯片自加热效应会更加明显, 然而当环境温度处于低温时, 器件与制冷器的温度梯度会增大, 从而散热效果会更明显, 因此铜基板芯片不容易因为电流加大器件温度升高而导致热膨胀, 也即不易因为电流升高而使发光阱层应力释放。这与前面已经解释的低温时两种基板芯片的EL谱峰值波长差值会增加是相应的。

在80 K和13 K时, 两种基板的芯片其EL谱峰值波长随电流的增加不是单调变化的。对于超低温时, LED芯片的EL谱峰值波长随驱动电流的增加不是单调变化的, 在文献中多有报道, 一般认为是由于电流增加时载流子的解局域化和带填充屏蔽效应等因素所导致的^[13]。

3.2 变温EL光谱对比分析

图2(a)-(d)为硅基板和铜基板芯片在0.1 mA, 15 mA, 100 mA, 400 mA时的变温EL谱。

从图2可以看出: 1) 在驱动电流为0.1 mA时, 两种基板芯片的EL谱峰值波长随环境温度的升高都呈现S形, 随着驱动电流的增加S形越来越不明显; 2) 在驱动电流为0.1 mA, 15 mA, 100 mA, 400 mA下, 两种基板芯片的EL谱峰值波长的差值随环境温度的升高而减小。

两种基板芯片的EL谱峰值波长随环境温度的升高都呈现S形, 在低温范围内峰值波长先红移后蓝移, 160 K以后再次红移。EL谱峰值波长随环境温度的变化呈现S形, 在文献中多有报道^[13,15], 一般认为是由于发光阱层局域态分布不均匀、载流子的带填充效应和温度影响禁带宽度等因素导致的。本文的两种基板的芯片尽管发光阱层的应力不同, 但其EL谱波长随温度的变化趋势是基本一致的, 这表明: GaN薄膜应力状态不同、基板热导率不同、以及基板与GaN的热失配不同不会影响LED芯片的EL谱峰值波长随温度的变化规律。

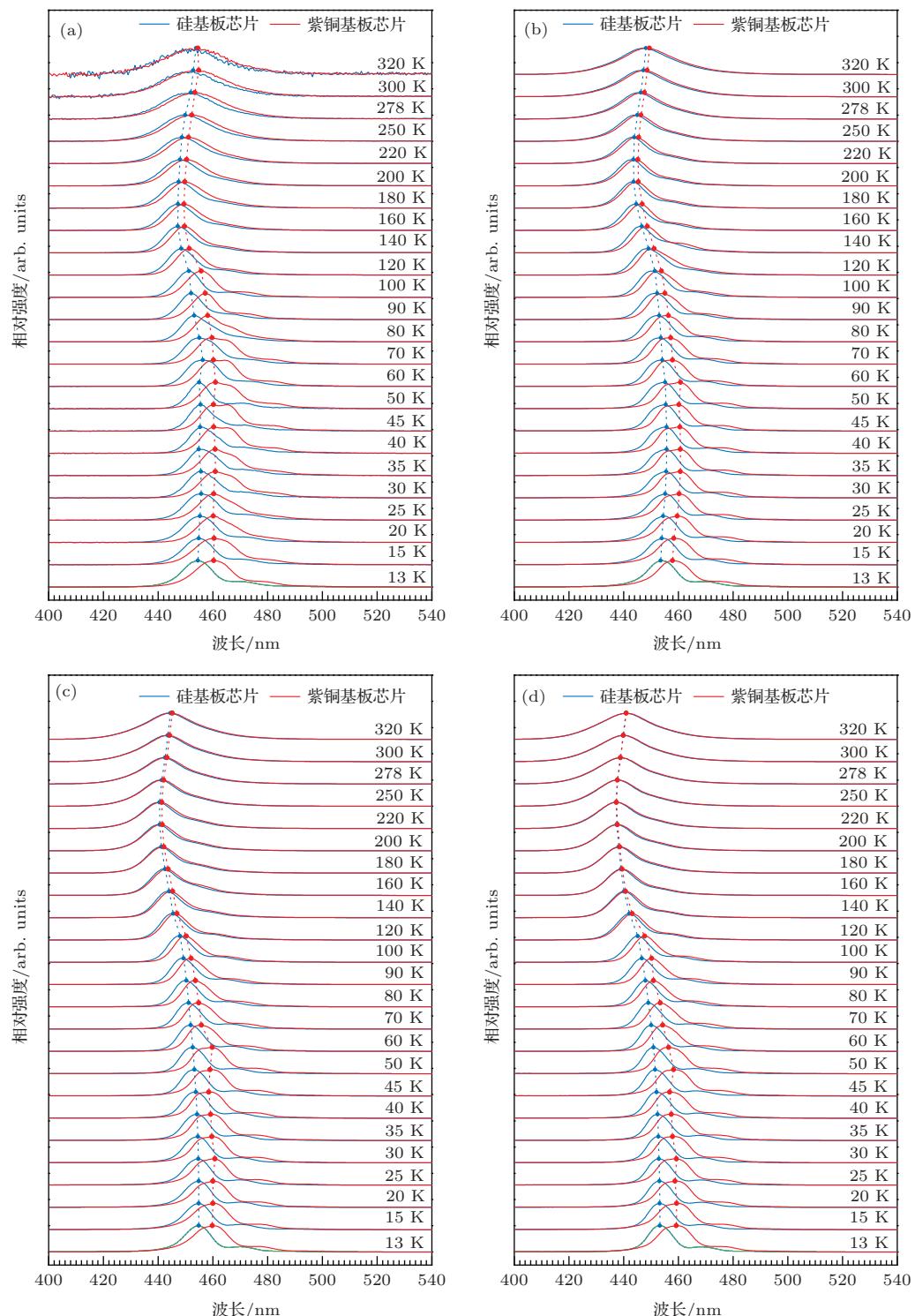


图2 (网刊彩色) 硅基板和铜基板LED芯片不同正向电流时的变温EL光谱 (a) 0.1 mA 正向电流时的变温EL谱; (b) 15 mA 正向电流时的变温EL谱; (c) 100 mA 正向电流时的变温EL谱; (d) 400 mA 正向电流时的变温EL谱

两种基板芯片的EL峰值波长的差值随温度升高越来越小, 小电流时EL谱始终不重叠, 大电流时室温状态两种基板芯片EL谱基本重叠。由前文可知, 室温时铜基板芯片发光阱层的压应力大于硅基板芯片, 低温时铜基板芯片发光阱层的压应力增加硅基板芯片的发光阱层压应力减小, 这就导致低温

时两种芯片的波长相差较大。当温度升高时, 由于铜基板的热膨胀系数大于硅基板, 所以随着温度的升高铜基板芯片发光阱层的压应力会逐渐减小而趋向于与硅基板一致。当芯片通0.1 mA小的驱动电流时, 芯片的自加热效应可以忽略不计, 当芯片通400 mA大的驱动电流时, 芯片的自加热效应比

较明显。在小电流时两种芯片的波长始终存在差异, 这说明环境温度的升高还不足以使两种芯片的发光阱层的应力处于一致状态; 在大电流时由于环境温度和芯片自加热的双重作用, 使得器件的温度可能高于环境温度, 这导致两种芯片的阱层的应力最后趋于一致, 从而EL谱基本重合。结果表明, 尽管两种芯片非工作状态的起始应力不同、基板热膨胀系数和热导率不同, 但它们在合适的环境温度和驱动电流下可以表现出相同的发光性能。

3.3 两种基板芯片相对 IQE 对比分析

图3为硅基板和铜基板LED芯片不同温度时的相对IQE曲线图。从图中可以看出: 1) 在100 K以下的温度时, 铜基板芯片和硅基板芯片的电流Droop效应有显著差别, 表现在驱动电流较小时铜基板芯片的IQE大于硅基板芯片, 随着驱动电流加大铜基板芯片的IQE会接近甚至小于硅基板芯片; 2) 在100 K以上的温度时, 两种基板芯片的Droop效应的差别没有低温时显著。在较小驱动电流时, 两种基板芯片的IQE基本一致, 在接近室温的温度时, 硅基板芯片在较大驱动电流情况下其IQE会大于铜基板芯片。

GaN基LED的电流Droop效应的研究是当前的一个研究热点, 人们对这一现象还没有统一的认识, Giovanni等人综合近百篇文献对电流Droop效应进行了比较全面的综述^[16], 影响Droop效应的因素有近十种之多, 而且多种因素相互交杂此外, 由变温的光功率与电流关系曲线换算成IQE曲线的理论方法也有待进一步的完备^[17-19]。

众所周知, 影响芯片光电参数的因素非常之多, 无论是同侧结构还是垂直结构的GaN基LED, 即便是规模化生产采用完全一致的工艺, 其芯片光电参数也会出现一定的起伏。本文共在不同时间制备过三批样品, 每批样品两种基板芯片各测试过5颗, 在此实验数量范围内, 结果和现象是一致的。两种基板芯片的外延结构和芯片制造工艺是一致的, 仅有芯片基板热膨胀系数不同, 因此, 本文实验结果表明垂直结构芯片选择不同的基板会导致Droop效应有较显著的差别, 至于为什么不同热膨胀系数的基板会导致Droop效应的差别还有待于进一步系统研究和反复长期验证。

在低温较小驱动电流时铜基板芯片相对IQE显著大于硅基板芯片, 随着驱动电流加大两种基板芯片的IQE会趋于一致; 在环境温度较高时, 两种基板的Droop效应相对而言相差较小, 大驱动电流

时随着电流加大, 硅基板芯片的IQE会由小于铜基板芯片演变为大于铜基板芯片。由于影响Droop的诸多消长因素交杂在一起, 要较合理的解释这一现象还有待进一步研究。

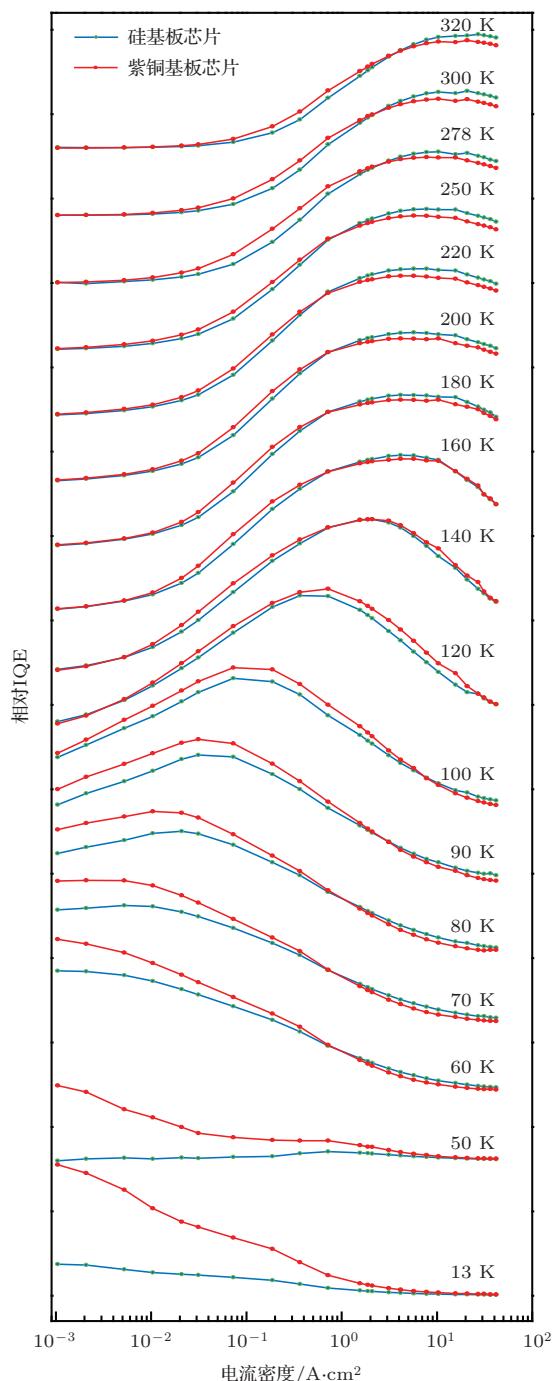


图3 (网刊彩色) 硅基板芯片和铜基板芯片 13 K 至 320 K 的相对 IQE 曲线对比图

4 结 论

垂直结构GaN基LED薄膜从外延衬底剥离转移到新基板上时, 其基板的选择具有多样性。因此

研究外延结构完全一致仅有支撑基板不同的芯片发光性能的差异, 将对于垂直结构芯片的设计具有重要参考价值。本文将Si衬底上外延生长的GaN基LED薄膜剥离转移到新的硅基板和紫铜基板上, 在硅衬底GaN基LED芯片生产线上获得了两种不同基板的垂直结构LED芯片, 并对其变温变电流EL特性进行了研究。实验结果表明: 1) 固定环境温度, 研究EL波谱随电流的变化。当驱动电流从0.01 mA增加到400 mA时, 在13 K温度下铜基板芯片的EL波长始终大于硅基板芯片约6 nm, 并且基本不会随着驱动电流的增加而改变; 在80 K时两种基板芯片的EL波谱峰值波长始终存在差值, 但会随着驱动电流的加大而差值减小; 在200 K和300 K时随着驱动电流的加大铜基板芯片的EL波长会由大于硅基板芯片3 nm左右而逐渐变为与硅基板芯片重合。2) 固定芯片驱动电流, 环境温度从13 K变到320 K。两种基板芯片的EL波长随温度升高均呈现S形变化并且峰值波长差值逐渐减小, 大电流400 mA时随着温度的升高两种基板的芯片波谱会逐渐重合, 然而小电流0.1 mA时波谱始终不会重合。3) 在100 K以下温度时铜基板芯片的Droop效应比硅基板芯片明显, 在100 K以上温度时硅基板芯片的Droop效应比铜基板芯片明显。本文将两种芯片性能的差异归结为两种芯片的基板具有不同的热膨胀系数和热导率, 在环境温度和电流变化时引起了不同的应力变化, 从而导致了其变温变电流的EL特性不同。在不改变外延结构的情况下, 仅改变垂直结构芯片的基板就能引起Droop效应的显著变化, 该实验结果对于人们认识当前争论不休的Droop效应提供了一种实验方法。

参考文献

- [1] Hua S K, James I J E 2014 *Phys. Status Solidi C* **11** 621
- [2] Koji O, Takahide O, Naoki S, Yoshio H, Masahito Y, Hiroshi A 2014 *Phys. Status Solidi C* **11** 722
- [3] Wang W K, Huang S Y, Huang S H, Wen K S, Wuu D S, Horng R H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 181113
- [4] Shchekin O B, Epler J E, Trottier T A, Margalith T, Steigerwald D A, Holcomb M O, Martin P S, Krames M R 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 071109
- [5] Fujii T, Gao Y, Sharma R, Hu E L, DenBaars S P, Nakamura S 2004 *Appl. Phys. Lett.* **95** 3916
- [6] Mo C L, Fang W Q, Pu Y, Liu H C, Jiang F Y 2005 *J. Cryst. Growth* **285** 312
- [7] Xiong C B, Jiang F Y, Fang W Q, Wang L, Mo C L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3176 (in Chinese) [熊传兵, 江风益, 方文卿, 王立, 莫春兰 2008 物理学报 **57** 3176]
- [8] Wu M, Zhang B S, Chen J, Liu J P, Shen X M, Zhao D G, Zhang J C, Wang J F, Li N, Jin R Q, Zhu J J, H. Yang 2004 *J. Cryst. Growth* **260** 331
- [9] Wael Tawfika Z, Juhui S, Jung J L, Jun S H, Sang W R, Hee S C, Bengso R, June K L 2013 *Appl. Surf. Sci.* **283** 727
- [10] Xiong C B, Jiang F Y, Fang W Q, Wang L, Liu H C, Mo C L 2006 *SCI. China Ser. E* **36** 733 (in Chinese) [熊传兵, 江风益, 方文卿, 王立, 刘和初, 莫春兰 2006 中国科学 **36** 733]
- [11] Xiao Z H, Zhang M, Xiong C B, Jiang F Y, Wang G X, Xiong Y J, Wang Y M 2010 *J. Synth. Cryst.* **39** 895 (in Chinese) [肖宗湖, 张萌, 熊传兵, 江风益, 王光绪, 熊贻婧, 汪延明 2010 人工晶体学报 **39** 895]
- [12] Hori A, Yasunaga D, Satake A, K. Fujiwara 2001 *Physica B* **308–310** 1193
- [13] Jiunn-Chyi L, Ya-Fen W, Yi-Ping W, Tzer-En N 2008 *J. Cryst. Growth* **310** 5143
- [14] Wu Y F, Hsu H P, Liu T Y 2012 *Solid-State Electron.* **68** 63
- [15] Lancefielda D, Crawforda A, Beaumontb B, Gibartb P, Heukenc M, M. Di Forte-Poissond 2001 *Mater. Sci. Eng. B* **82** 241
- [16] Giovanni V, Davide S, Matteo M, francesco B, Michele G, Gaudenzio M, Enrico Z 2013 *Appl. Phys. Lett.* **114** 071101
- [17] Wang C H, Kea C C, Chiua C H, Lia J C, Kuoa H C, Lua T C, Wangc S C 2011 *J. Cryst. Growth* **315** 242
- [18] Li Y L, Huang Y R, Lai Y H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 181113
- [19] Hader J, Moloney J V, S. W. Koch 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 181127

Electroluminescence properties of vertical structure GaN based LED on silicon and copper submount at different temperatures and current densities*

Huang Bin-Bin Xiong Chuan-Bing[†] Zhang Chao-Yu Huang Ji-Feng Wang Guang-Xu
Tang Ying-Wen Quan Zhi-Jue Xu Long-Quan Zhang Meng Wang Li Fang Wen-Qing
Liu Jun-Lin Jiang Feng-Yi

(National Engineering Technology Research Center for LED on Si Substrate, Nanchang University, Nanchang 330047, China)

(Received 7 July 2014; revised manuscript received 22 July 2014)

Abstract

GaN-based light-emitting diode (LED) thin films grown on Si(111) substrates are successfully detached and transferred to copper and silicon submounts, and then become 40mil high power vertical structure LED chips. Electroluminescence properties of the two kinds of chips with the same epitaxial structure are investigated at different forward current densities and ambient temperatures. The obtained results are as follows. 1) at the same temperature, the EL peak wavelength of the chip with copper submount is longer than that of the chip with silicon submount. Under 13 K, the EL peak wavelength of the chip with copper submount is about 6 nm longer than that of chip with silicon submount as the driving current increases from 0.01 mA to 400 mA. While under 300 K, the difference in EL peak wavelength between the two kinds of chips at 0.01 mA is only about 3 nm; as the current increases to 400 mA, the difference will tend to zero and the spectra will coincide. 2) At the same current density, as the temperature increases from 13 K to 320 K, the EL peak wavelengths of the two kinds of chips are S-shaped, and the spectra tend to coincide. 3) When the temperature is below 100 K, the current density droop effect of the chips with copper submount is more obvious than that of chips with silicon submount, while above 100 K, the results are just inverse. Perhaps, it is due to the fact that the differences in thermal expansion coefficient and thermal conductivity between the two kinds of submounts lead to the different EL properties.

Keywords: GaN, thermal expansion coefficient, internal quantum efficiency, thermal conductivity

PACS: 78.60.Fi, 78.66.Fd, 68.65.fg, 62.40.+i

DOI: [10.7498/aps.63.217806](https://doi.org/10.7498/aps.63.217806)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51072076, 11364034, 61334001), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant Nos. 2011AA03A101, 2012AA041002), and National Key Technology Research and Development Program of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2011BAE32B01).

† Corresponding author. E-mail: xcbxcbxcb@163.com