

硅衬底氮化镓基 LED 薄膜转移至柔性黏结层基板后其应力及发光性能变化的研究

黄斌斌 熊传兵 汤英文 张超宇 黄基锋 王光绪 刘军林 江风益

Changes of stress and luminescence properties in GaN-based LED films before and after transferring the films to a flexible layer on a submount from the silicon epitaxial substrate

Huang Bin-Bin Xiong Chuan-Bing Tang Ying-Wen Zhang Chao-Yu Huang Ji-Feng Wang Guang-Xu Liu Jun-Lin Jiang Feng-Yi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 177804 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.177804

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.177804>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I17>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

近紫外激发具有颜色可调的 $\text{Er}^{3+}/\text{Eu}^{3+}$ 共掺 BiOCl 荧光粉

Color-tunableness of $\text{Er}^{3+}/\text{Eu}^{3+}$ co-doped BiOCl phosphors for near ultraviolet excitation

物理学报.2015, 64(17): 177803 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.177803>

半导体量子点在白光 LED 器件上的应用研究

Application of semiconductor quantum dots to white-light-emitting diodes

物理学报.2015, 64(13): 137801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.137801>

Eu^{3+} 掺杂 CaMoO_4 微米荧光粉发光性质的研究

Luminescence properties of Eu^{3+} doped CaMoO_4 micron phosphors

物理学报.2015, 64(10): 107803 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.107803>

生长条件对 Ga 掺杂 ZnO 薄膜微观结构及光致发光性能的影响

Effects of growth conditions on the microstructures and photoluminescence properties of Ga-doped ZnO films

物理学报.2015, 64(8): 087803 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.087803>

新型电子俘获型材料 $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+} \text{La}^{3+}$ 长余辉和光激励发光性能的研究

Long persistent and photo-stimulated luminescence properties of $\beta\text{-Sr}_2\text{SiO}_4:\text{Eu}^{2+} \text{La}^{3+}$ phosphors

物理学报.2015, 64(1): 017802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.017802>

硅衬底氮化镓基LED薄膜转移至柔性黏结层基板后其应力及发光性能变化的研究*

黄斌斌¹⁾ 熊传兵^{1)2)†} 汤英文²⁾ 张超宇¹⁾ 黄基锋¹⁾ 王光绪¹⁾
刘军林¹⁾ 江风益¹⁾

1)(南昌大学国家硅基LED工程技术研究中心, 南昌 330047)

2)(闽南师范大学LED光源与照明研究中心, 漳州 363000)

(2015年2月14日收到; 2015年5月5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)薄膜转移至含有柔性黏结层的基板上, 获得了不受衬底和支撑基板束缚的LED薄膜. 利用高分辨率X射线衍射仪(HR-XRD)研究了薄膜转移前后的应力变化, 同时对其光致发光(PL)光谱的特性进行了研究. 结果表明: 硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板后, GaN受到的应力会由转移前巨大的张应力变为转移后微小的压应力, InGaN/GaN量子阱受到的压应力则增大; 尽管LED薄膜室温无损转移至柔性基板其InGaN阱层的In组分不会改变, 然而按照HR-XRD倒易空间图谱通用计算方法会得出平均晶组发生了变化; GaN基LED薄膜从外延片转移至柔性基板时其PL谱会发生明显红移.

关键词: 氮化镓, 柔性基板, 倒易空间, 光致发光

PACS: 78.55.-m, 78.66.Fd, 61.05.C-, 62.40.+i

DOI: 10.7498/aps.64.177804

1 引言

GaN基LED凭借其可调的全色能隙以及优良的物理化学性能, 使其在照明、医学、军事等领域有着广泛的应用^[1-3]. 由于同质外延生长GaN基LED薄膜的衬底很难制备, 因此GaN基LED薄膜的生长主要采用异质外延, 目前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居中, 硅衬底技术路线市场占有率最小, 但它的市场份额正在逐渐扩大且应用越来越广泛^[4,5]. 由于异质材料之间的晶格和热失配, 导致异质外延生长存在应力, 且GaN基LED薄膜是超薄的多层异质材料, 其各子层间存在较为复杂的应力关系. 虽然GaN基LED

薄膜早已实现了商业化, 但其内在的应力关系还没有完全认识清楚, 而这种应力关系对外延生长出高质量的GaN基LED薄膜有着极其重要的指导作用, 因此GaN基LED薄膜应力研究显得非常有必要.

目前研究LED薄膜应力主要有三种方法, 它们分别是高分辨率XRD, Raman光谱以及通过其PL或EL谱峰值波长偏移反推^[6-8]. 对GaN基LED薄膜应力的研究很多, 但都是基于外延衬底上或者通过压焊转移到新的支撑基板上进行的^[9-11]. 众所周知, 支撑衬底的热膨胀系数和晶格常数等性能都会影响到整个薄膜的应力, 要弄清楚整个薄膜各层的应力关系, 就必须消除支撑衬底对薄膜的影响. 尽管文献上已有少量关于自由支撑GaN基LED薄膜光电性能的研究^[12,13], 但其研究是通

* 国家自然科学基金(批准号: 51072076, 11364034, 61334001, 21406076, 61040060), 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.

† 通信作者. E-mail: chuanbingxiong@126.com

过薄膜的PL或EL谱峰值波长偏移反推薄膜应力。GaN基LED薄膜在不受其支撑衬底影响的情况下,采用HRXRD的方法测试薄膜内在应力,以及通过薄膜的倒易空间图谱计算在只改变薄膜状态时InGaN/GaN量子阱平均组分的结果是否一样,有关这方面的研究还未见报道。

本文采用湿法腐蚀去除硅衬底的方法,将硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板,获得了无损的且不受支撑衬底影响的GaN基LED薄膜,采用HRXRD对LED薄膜转移前后GaN和InGaN/GaN量子阱的应力变化进行了研究;同时采用405 nm半导体激光器对其光致发光光谱的特性进行了一定的研究。

2 实验

实验所用的硅衬底GaN基LED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^[14,15]。实验时,采用湿法腐蚀去除硅衬底的方法,将硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板上。GaN基LED薄膜与支撑基板的黏接层采用的是有机高分子材料,该材料具有柔性、可在110 °C融化、耐硅腐蚀液等特性。使得硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板后,薄膜的性能不会受到支撑基板的影响。

本文利用HRXRD分别测试分析了GaN基LED薄膜转移前后GaN与量子阱的应力变化情况,以及利用405 nm半导体激光器测试了转移前后其PL谱的变化。HRXRD衍射仪为PANalytical X'Pert PRO MPD,其靶材料为Cu靶,X射线波长为1.54056 Å,X射线管工作电压40 kV,电流40 mA;PL谱的激光光源为半导体激光器,波长为405 nm,最大输出激光功率为300 mW;光谱仪为卓立汉光SBP500光栅单色仪;测试环境均为室温。

3 结果与讨论

3.1 高分辨率X射线三轴晶衍射 $\omega/2\theta$ 扫描分析

为消除HRXRD衍射仪光路调节引入的零点误差及晶面倾斜引入的衍射峰位偏移,采用同一晶面(hkl)的不同级数衍射方法来测量GaN晶格常数^[16]。图1为GaN基LED薄膜在外延硅衬

底上和柔性基板上 $\omega/2\theta$ 扫描图谱对比。图1(a)为(0002)-(0004)面对称扫描的对比图;图1(b)为(10 $\bar{1}$ 2)-(20 $\bar{2}$ 4)面斜对称扫描的对比图。

在图1中,绿线与红线分别代表的是GaN基LED薄膜在外延硅衬底上和转移至柔性基板上的HRXRD三轴晶衍射 $\omega/2\theta$ 扫描图谱;两次测量时X射线实际入射表面不同,转移前是p型GaN表面,而转移后是AlN缓冲层表面;从图1(a)可以清楚的看到转移前后LED薄膜中AlN缓冲层(0002)面的衍射峰,说明X射线是穿透整个GaN基LED薄膜的,且不同的实际入射表面不会影响HRXRD的衍射结果。

在图1中,实测的GaN的(0002)面与(10 $\bar{1}$ 2)面的X射线衍射的一级衍射峰位与二级衍射峰位的差值分别为 $\delta\omega_1$ 和 $\delta\omega_2$,则(0002)面与(0004)面的布拉格角和(10 $\bar{1}$ 2)面与(20 $\bar{2}$ 4)面的布拉格角满足

$$\begin{aligned}\theta_{(0002)} &= \theta_{(0004)} + \delta\omega_1, \\ \theta_{(10\bar{1}2)} &= \theta_{(20\bar{2}4)} - \delta\omega_2.\end{aligned}$$

根据布拉格公式 $2d \sin \theta_{(hkl)} = \lambda$ 及六方晶体倒空间公式

$$d_{(hkl)} = \frac{1}{\sqrt{\frac{4}{3} \left(\frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} \right) + \frac{l^2}{c^2}}} \quad [17]$$

可分别计算出GaN基LED薄膜在外延衬底上GaN水平方向与垂直方向的晶格常数分别为3.1939 Å和5.1815 Å和转移至柔性基板后GaN水平方向与垂直方向的晶格常数分别为3.1878 Å和5.1860 Å。由GaN体单晶水平方向和垂直方向的晶格常数分别为3.1892 Å和5.1850 Å^[18],并根据应力会使GaN水平方向和垂直方向的晶格常数发生变化的特性^[16],得出硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板后,GaN受到的应力由转移前巨大的张应力变为转移后微小的压应力。

GaN基LED薄膜在外延硅衬底上呈现张应力,这与文献的报道相吻合,主要归因为GaN材料与硅衬底材料之间存在巨大的热失配和晶格失配^[19]。GaN基LED薄膜转移至柔性基板后GaN呈现微小的压应力,本文归因于硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板后,消除了外延硅衬底对薄膜的影响,且薄膜的应力不会受支撑基板的影响;由AlN与GaN存在的晶格和热失配导致AlN缓冲层对GaN会产生微小的压应力^[20];最终导致了柔性基板上的GaN受到微小的压应力。

图2是硅衬底GaN基LED薄膜转移至柔性基板后, GaN基LED薄膜转移前后沿(0002)面的HRXRD三轴晶衍射对称 $\omega/2\theta$ 扫描图, 绿线和红

线分别代表了外延硅衬底上和转移至柔性基板上的GaN基LED薄膜的衍射图谱。

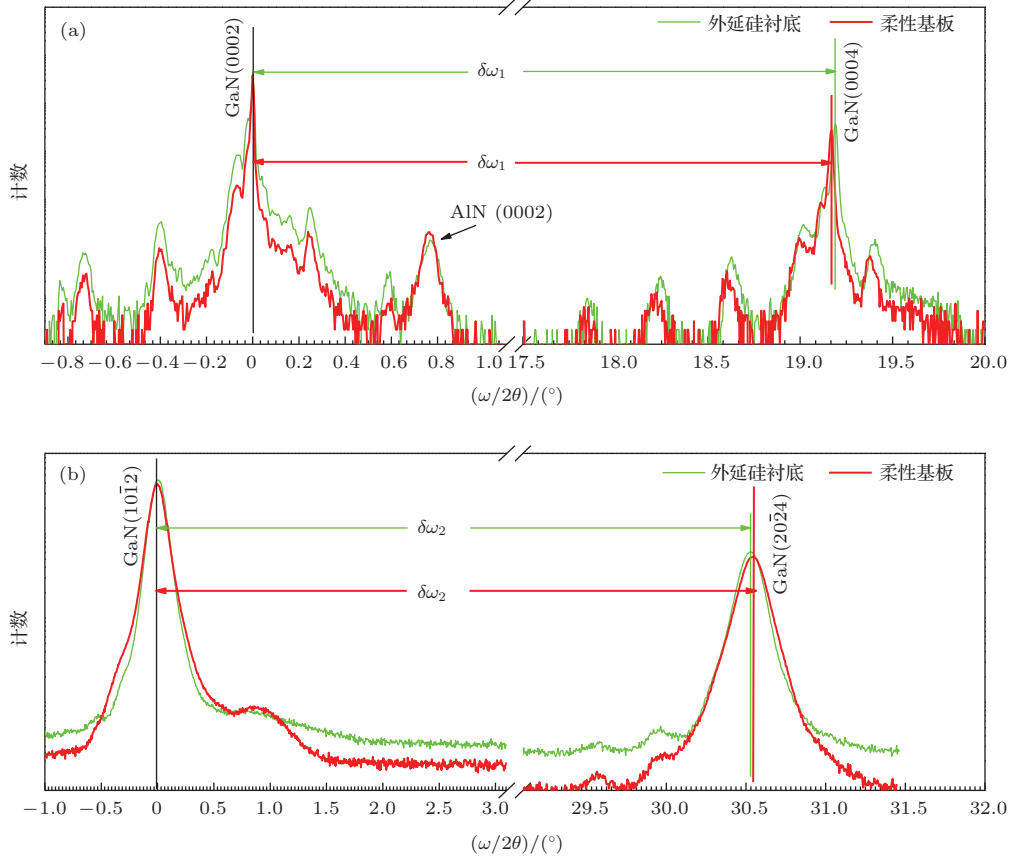


图1 (网刊彩色) GaN基LED薄膜在外延硅衬底上和柔性基板上 $\omega/2\theta$ 扫描图谱对比 (a) (0002)-(0004)面对称扫描的对比图; (b) (10 $\bar{1}$ 2)-(20 $\bar{2}$ 4)面斜对称扫描的对比图

Fig. 1. (color online) The comparison of ω - 2θ scanning pattern between GaN-based LED thin films grown on Si substrate and the films transferred to the submount with a flexible layer: (a) the comparison of (0002)-(0004) symmetrical scanning between the two kinds LED films; (b) the comparison of (10 $\bar{1}$ 2)-(20 $\bar{2}$ 4) asymmetrical scanning between the two kinds LED films.

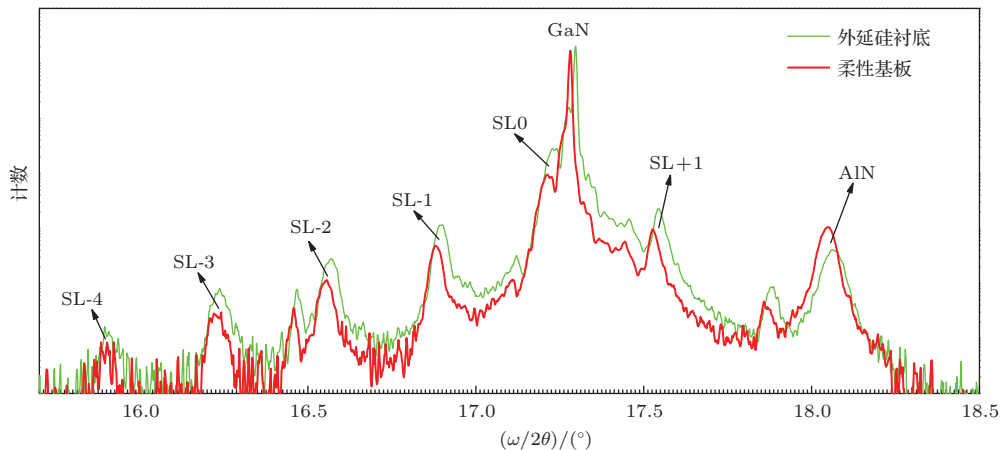


图2 (网刊彩色) 外延硅衬底上和转移至柔性基板上的GaN基LED薄膜沿(0002)面高分辨率X射线三轴晶衍射对称 $\omega/2\theta$ 扫描图

Fig. 2. (color online) GaN(0002) ω - 2θ symmetrical scan of GaN-based LED film on the epitaxial Si substrate and the flexible submount.

从图2中可以清晰的看出: 1) 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, GaN (0002) 面的衍射峰位减小, 且 AlN 缓冲层的衍射峰强度增强; 2) 转移前后都能清晰的看到 GaN(0002) 面的衍射主峰和 InGaN/GaN 量子阱的各级衍射峰, 从而利用高斯拟合可以确定各衍射峰的布拉格角. 由公式 $L_{W+B} = \lambda / (2\Delta\theta_P \cos \theta_B)$ [21], 可以计算得出 InGaN/GaN 多量子阱中一个周期的厚度, L_{W+B} 是 InGaN 量子阱单层厚度与 GaN 势垒单层厚度之和, $\Delta\theta_P$ 是相邻两级 InGaN/GaN 量子阱衍射峰的角度之差, θ_B 是 GaN(0002) 面的衍射主峰的布拉格角, λ 是 X 射线波长, 为 1.54056 Å. 采用这种方法可以计算得出: GaN 基 LED 薄膜在外延硅衬底上和柔性基板上的多量子阱中一个周期的厚度分别为 142.46 Å 和 143.37 Å, 说明硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后 InGaN/GaN 量子阱厚度有微小的增大, 约为 0.9 Å.

硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后,

GaN(0002) 面的衍射峰位减小, 由布拉格公式 $2d \sin \theta = \lambda$ 可知转移后 GaN(0002) 面的晶格间距增大, 这与上文晶格常数测试结果是一致的; GaN 基 LED 薄膜转移前后的衍射图谱都有 AlN 缓冲层的衍射峰且转移至柔性基板后的 AlN 衍射峰更强, 说明 X 射线是完全穿透 LED 薄膜的, 但是穿过程中强度会有一定程度的减弱; 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后 InGaN/GaN 量子阱的厚度轻微增大, 本文归因为: 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, GaN 由转移前巨大的张应力变为转移后较小的压应力导致 InGaN/GaN 量子阱受到的压应力增大, 从而导致了量子阱厚度的微小增大.

3.2 高分辨率 X 射线三轴晶衍射的倒易空间图谱分析

图3(a), (b) 为外延硅衬底上与转移至柔性基板上的 GaN 基 LED 薄膜 (0002) 面的倒易空间图.

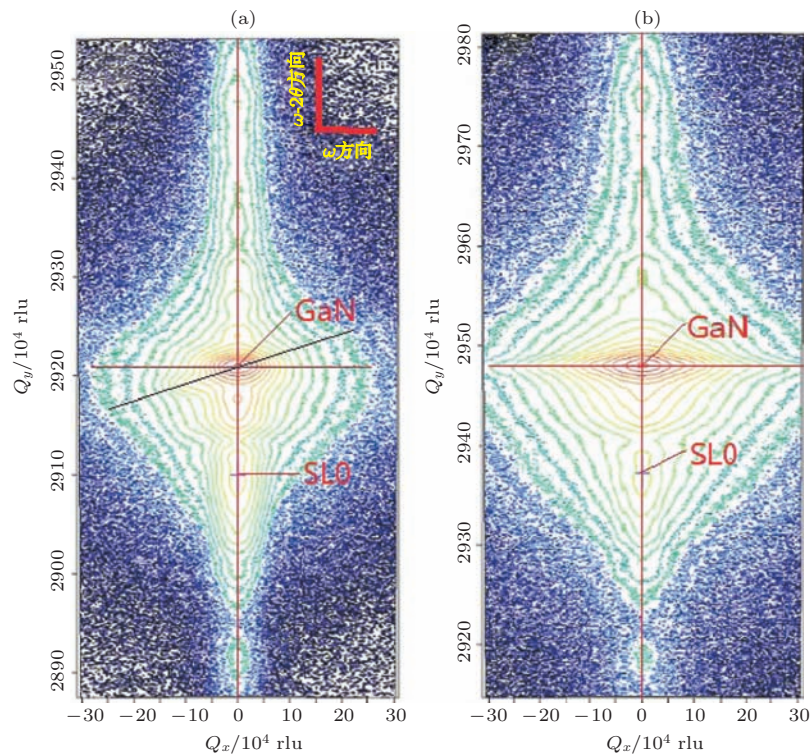


图3 (网刊彩色) GaN 基 LED 薄膜 (0002) 面对称衍射的倒易空间图 (a) 硅衬底外延生长的 GaN 基 LED 薄膜 (0002) 面的倒易空间图; (b) 转移至柔性基板上的 GaN 基 LED 薄膜 (0002) 面的倒易空间图
 Fig. 3. (color online) A Reciprocal space maps for the (0002) symmetrical Reflections of GaN-based LED film: (a) LED films grown on Si substrate; (b) LED films transferred to the flexible submount.

从图3可以看出: 1) GaN 基 LED 薄膜在外延硅衬底上和转移至柔性基板上, 其 (0002) 面的倒易空间图谱都能明显的看出 GaN(0002) 面的倒易格

点和 InGaN/GaN 量子阱 (0002) 面的级的倒易格点; 2) GaN 基 LED 薄膜转移前后 GaN (0002) 面的倒易格点与 InGaN/GaN 量子阱 (0002) 面的 0 级倒

易格点的 $\Delta Q_x = 0$; 3) 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, GaN(0002) 面倒易点上衍射强度的等高线沿 ω 方向出现了明显的展宽; 转移前后 InGaN/GaN 量子阱 (0002) 面级倒易点上的等高线沿 $\omega-2\theta$ 方向都呈现严重展宽.

GaN 基 LED 薄膜在外延硅衬底上和转移至柔性基板上, 其 (0002) 面的倒易空间图谱都能明显的看出 GaN(0002) 面的倒易格点和 InGaN/GaN 量子阱 (0002) 面的级倒易格点, 说明了硅衬底外延生长的 GaN 基 LED 薄膜的晶体质量很好, 且转移至柔性基板上其晶体质量基本不变, 表明硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板的过程中对 LED 薄膜没有损伤, 这说明本文采用的湿法腐蚀去除硅衬底的方法能实现硅衬底 GaN 基 LED 薄膜的无损转移. 转移前后 GaN(0002) 面和 InGaN/GaN 量子阱 (0002) 面 0 级倒易格点的 Q_x 相同, 说明转移前后 GaN 基 LED 薄膜中 GaN(0002) 面与量子阱 (0002) 面是完全平行的 [22], 进一步验证了 LED 薄膜转移过程中对其没有损伤.

在倒易空间图中, 对理想的单晶或厚度较大的单晶外延层而言, 其倒易点上的衍射强度等高线呈圆形; 而在非理想情况下, 衍射强度的等高线

会因为晶体内的应力、外延薄膜的厚度、探测器狭缝等因素而向不同方向展宽. 其中, 沿 ω 方向展宽反映了晶体的晶向效应而沿 $\omega-2\theta$ 方向展宽反映了晶体的晶面效应; 图 3 (a) 中 GaN(0002) 面倒易点上的等高线沿“黑线”方向展宽就是由探测器狭缝引起的 [17]. 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, GaN(0002) 面倒易点上的衍射强度的等高线沿 ω 方向出现了明显的展宽, 本文归因为: 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, GaN 由转移前的张应力变为转移后的压应力, 应力的变化引起了晶面的弯曲以及薄膜在柔性基板上由于不受基板的影响可能出现了微小的弯曲, 这都将导致 GaN(0002) 面倒易点上的衍射强度的等高线沿 ω 方向的展宽. 转移前后 InGaN/GaN 量子阱 (0002) 面 0 级倒易点上的等高线沿 $\omega-2\theta$ 方向都呈现严重展宽, 主要是因为量子阱的厚度特别薄, 只有十几个纳米所造成的.

图 4 为 GaN 基 LED 薄膜 (10 $\bar{1}$ 5) 面非对称衍射的倒易空间图, 图 4 (a), (b) 分别为硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板前后 GaN 薄膜 (10 $\bar{1}$ 5) 面的倒易空间图谱.

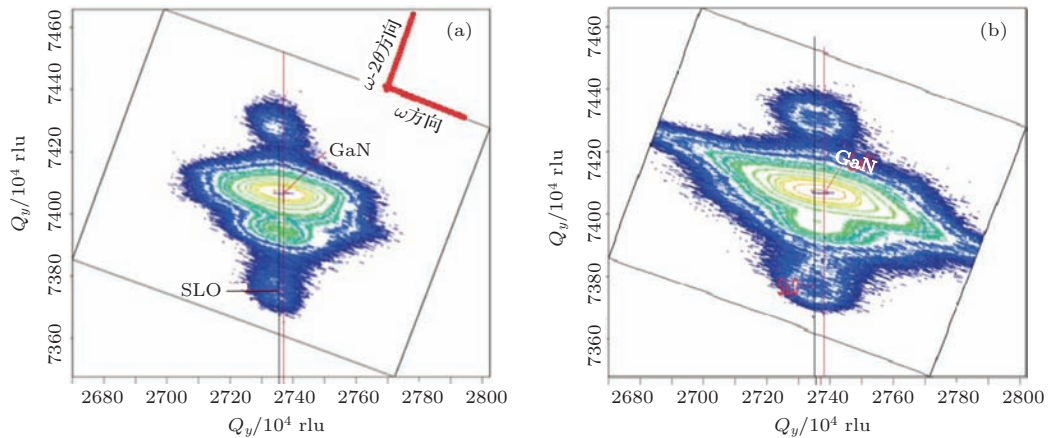


图 4 (网刊彩色) GaN 基 LED 薄膜 (10 $\bar{1}$ 5) 面非对称衍射的倒易空间图 (a) 外延片上的 GaN 基 LED 薄膜 (10 $\bar{1}$ 5) 面倒易空间图; (b) 转移至柔性基板上的 GaN 基 LED 薄膜 (10 $\bar{1}$ 5) 面的倒易空间图

Fig. 4. (color online) A Reciprocal space maps for the (10 $\bar{1}$ 5) asymmetrical Reflections of GaN-based LED film: (a) LED films grown on Si substrate; (b) LED films transferred to the flexible submount.

从图 4 中可以看出: 1) 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, GaN(10 $\bar{1}$ 5) 面非对称衍射的倒易点上的衍射强度等高线沿 ω 方向出现明显的展宽, 这与 GaN(0002) 面的展宽的原因是相同的; 2) GaN 基 LED 薄膜在外延硅衬底上和柔性基板上, GaN(10 $\bar{1}$ 5) 面与 InGaN/GaN 量子阱 (10 $\bar{1}$ 5) 面 0 级非对称衍射倒易格点的 $\Delta Q_x \neq 0$, 说明在外延

硅衬底上和柔性基板上其 InGaN 量子阱与 GaN 都不是完全共格的 [23].

通过 HRXRD 对 GaN 基 LED 薄膜的 (hkil) 面非对称衍射的倒易空间图, 可以计算出 InGaN/GaN 量子阱的平均 In 组分以及其相对 GaN 层的弛豫度 [24]. 本文计算所使用的 GaN 体单晶和 InN 体单晶的参数分别为: 1) GaN 和 InN 的

水平方向与垂直方向晶格常数分别为 $a_{\text{GaN}} = 3.1892 \text{ \AA}$, $c_{\text{GaN}} = 5.1850 \text{ \AA}$ 和 $a_{\text{InN}} = 3.5378 \text{ \AA}$, $c_{\text{InN}} = 5.7033 \text{ \AA}$ [18,25]; 2) 它们的弹性系数分别为 GaN ($c_{13} = 103 \text{ GPa}$ 和 $c_{33} = 405 \text{ GPa}$) 和 InN ($c_{13} = 92 \text{ GPa}$ 和 $c_{33} = 224 \text{ GPa}$) [26]. 本文测得薄膜转移前后 GaN 和 InGaN/GaN 量子阱 0 级倒易格点, 以及通过 $Q_x = (\sqrt{4(h^2 + h \cdot k + k^2)/a}) \cdot$

$\frac{\lambda}{2}$ 和 $Q_y = (1/c) \cdot \frac{\lambda}{2}$ (单位为 rul) 计算所得的 InN 完全弛豫和 InN 相对 GaN 完全共格的倒易格点, 如表 1 所列, 式中 Q_x 和 Q_y 为散射矢量. 通过计算得出: 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, InGaN/GaN 量子阱的平均铟组分由 0.025069 变为 0.026336, 竟增大了 0.13%; 量子阱相对 GaN 的弛豫度由 28.13% 变为 31.88%, 弛豫度略有增大.

表 1 通过倒易空间测试以及相关计算得出的 (10 $\bar{1}$ 5) 面的倒易格点
Table 1. The reciprocal-lattice coordinates of (10 $\bar{1}$ 5) calculate and measure by RSM.

	外延硅衬底上的 LED 薄膜				转移至柔性基板上的 LED 薄膜			
	测试得 GaN	测试得 InGaN/GaN 量子阱 0 级	计算得完全弛豫的 InN	计算得完全应变的 InN	测试得 GaN	测试得 InGaN/GaN 量子阱 0 级	计算得完全弛豫的 InN	计算得完全应变的 InN
Q_x/rlu	0.27848	0.278292	0.25055	0.27848	0.27902	0.278781	0.25055	0.27902
Q_y/rlu	0.74331	0.740406	0.66866	0.61098	0.74266	0.739667	0.66866	0.61008

本文 LED 薄膜的转移工艺是在较低温下进行的且对 LED 薄膜是无损的, 铟不会在 LED 薄膜中扩散. 因此, 硅衬底 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板后, 量子阱的平均铟组分不会改变, 但通过 HRXRD 倒易空间的测试结果却是转移前后平均铟组分竟有微小的增大; 本文归因为: 本文通过 HRXRD 倒易空间计算量子阱的铟组分是以 GaN 为衬底的, 由于 GaN 在转移前后受到的应力而导致其晶格常数不同, 且对于 GaN 和 InN 体单晶的相关参数还没有统一的标准 [17], 这都可能会影响到铟组分计算的准确性. 对于通过 HRXRD 准确的测试 LED 薄膜中 InGaN/GaN 量子阱的铟组分的方法, 还有待进一步的深入探究.

3.3 室温下光致发光 (PL) 光谱分析

图 5 为室温下外延硅衬底上和柔性基板上的 GaN 基 LED 薄膜 PL 光谱图, 半导体激光器的激光波长为 405 nm. 由于该激发激光的能量要小于 GaN 和 AlN 的禁带宽, 所以该激光可以透过 GaN 层以及 AlN 缓冲层直接激发 InGaN 量子阱. 因此, 尽管转移前后激光的入射表面不同, 但激发激光都是直接激发 InGaN 量子阱的, 激发激光的入射表面不会影响到其 PL 谱.

从图 5 可以看出: 转移至柔性基板上的 GaN 基 LED 薄膜的 PL 谱峰值波长大于外延硅衬底上的, 由于薄膜转移至柔性基板上量子阱的平均铟组分略有增大, 可能是测试方法导致的; 且量子阱和

垒的总厚度才改变 0.9 \AA , 对薄膜 PL 谱峰值波长的影响非常小; 所以本文初步认为: 主要是因为转移至柔性基板上的 LED 薄膜发光阱层的压应力大于硅衬底上的, 其压应力导致的能带倾斜 [27,28] 程度大于外延硅衬底的, 故而转移至柔性基板上的 LED 薄膜 PL 谱峰值波长大于外延硅衬底上的. 具体是何种原因导致 LED 薄膜转移至柔性基板后 PL 谱红移, 还有待进一步深入的研究.

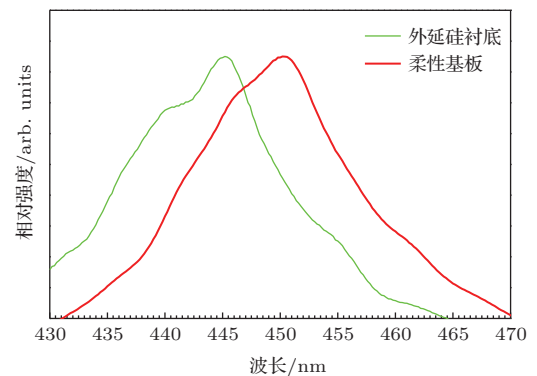


图 5 (网刊彩色) 外延硅衬底上和柔性基板上的 GaN 基 LED 薄膜的光致发光 (PL) 对比图

Fig. 5. (color online) The comparison of photoluminescence pattern between GaN-based LED thin films grown on Si substrate and the films transferred to the submount with a flexible layer.

4 结 论

采用湿法腐蚀去除硅衬底的工艺, 将硅衬底上外延生长的 GaN 基 LED 薄膜转移至柔性基板

上. 利用HRXRD研究了LED薄膜转移前后GaN和InGaN/GaN量子阱的应力变化, 并对室温下LED薄膜转移前后PL特性进行了研究. 得到以下结论: GaN基LED薄膜在外延硅衬底上受到张应力, 而转移至柔性基板后, 在其不受基板影响的状态下呈现微小的压应力; 硅衬底GaN基LED转移至柔性基板后, LED薄膜在无衬底和基板的影响下会有微小的弯曲; 柔性基板上的InGaN量子阱受到的压应力更大, 甚至导致了在柔性基板上的InGaN/GaN量子阱一个周期的厚度稍有增大; 通过对GaN(10 $\bar{1}$ 5)面非对称衍射的倒易空间计算得出: 外延硅衬底上和柔性基板上的LED薄膜中InGaN量子阱相对于GaN层都是部分弛豫的, 柔性基板上的弛豫度要略大; 硅衬底外延生长的GaN基LED薄膜转移至柔性基板后, 室温下其PL谱的峰值波长变大约5 nm.

参考文献

- [1] McCluskey M D, Van de Walle C G, Master C P, Romano L T, Johnson N M 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 2725
- [2] Taniyasu Y, Kasu M, Makimoto T 2006 *Nature* **441** 325
- [3] Pereira S, Correia M R, Monteiro T, Pereira E, Alves E, Sequeira A D, Franco N 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2137
- [4] Kong H S, James I, Edmond J 2014 *Phys. Status Solidi C* **11** 621
- [5] Okuno K, Oshio T, Shibata N, Honda Y, Yamaguchi M, Amano H 2014 *Phys. Status Solidi C* **11** 722
- [6] Tang J J, Liang T, Shi W L, Zhang Q Q, Wang Y, Liu J, Xiong J J 2011 *Appl. Surf. Sci.* **257** 8846
- [7] Perlin P, Mattos L, Shapiro N A, Kruger J, Wong W S, Sands T, Cheung N W, Weber E R 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 2385
- [8] Li Y L, Huang Y R, Lai Y H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 181113
- [9] Huang B B, Xiong C B, Zhang C Y, Huang J F, Wang G X, Tang Y W, Quan Z J, Xu L Q, Zhang M, Wang L, Fang W Q, Liu J L, Jiang F Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 217806 (in Chinese) [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 2014 物理学报 **63** 217806]
- [10] Park J, Goto T, Yao T, Lee S, Cho M 2013 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46** 155104
- [11] Zhao D G, Xu S J, Xie M H, Tong S Y, Hui Y 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 677
- [12] Wong W S, Sands T, Cheung N W, Kneissl M, Bour D P, Mei P, Romano L T, Johnson N M 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 1360
- [13] Stach E A, Kelsch M, Nelson E, Wong W S, Sands T, Cheung N W 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 1819
- [14] Mo C L, Fang W Q, Pu Y, Liu H C, Jiang F 2005 *J. Cryst. Growth* **285** 312
- [15] 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]
- [16] Xiong Y J, Zhang M, Xiong C B, Xiao Z H, Wang G X, Wang Y M, Jiang F Y 2010 *Chin. J. Lumin.* **31** 531 (in Chinese) [熊贻婧, 张萌, 熊传兵, 肖宗湖, 王光绪, 汪延明, 江风益 2010 发光学报 **31** 531]
- [17] Moram M A, Vickers M E 2009 *Rep. Prog. Phys.* **72** 036502
- [18] Paszkowicz W 1999 *Powder Diffr.* **14** 258
- [19] Ishikawa H, Zhao G Y, Nakada N, Egawa T, Jimbo T, Umeno M 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** L492
- [20] Bläsing J, Reiher A, Dadgar A, Diez A, Krost A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 2722
- [21] Wu M F, Zhou S Q, Yao S D, Zhao Q, Vantomme A 2004 *J. Vac. Sci. Technol. B* **22** 921
- [22] Roesener T, Klinger V, Weuffen C, Lackner D, Dimroth F 2013 *J. Cryst. Growth* **368** 21
- [23] Dobrovolskas D, Vaitkevičius A, Mickevičius J, Tuna Ö, Giesen C, Heuken M, Tamulaitis G 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 163516
- [24] Pereira S, Correia M R, Pereira E, O'Donnell K P, Alves E, Sequeira A D, Franco N, Watson I M, Deatcher C J 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 3913
- [25] Detchprohm T, Hiramatsu K, Itoh K, Akasaki I 1992 *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** L1454
- [26] Wright A F 1997 *J. Appl. Phys.* **82** 2833
- [27] 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, Yang H 2004 *J. Cryst. Growth* **260** 331
- [28] Tawfik W Z, Song J, Lee J J, Ha J S, Ryu S W, Choi H S, Ryu B, Lee J K 2013 *Appl. Surf. Sci.* **283** 727

Changes of stress and luminescence properties in GaN-based LED films before and after transferring the films to a flexible layer on a submount from the silicon epitaxial substrate*

Huang Bin-Bin¹⁾ Xiong Chuan-Bing^{1)2)†} Tang Ying-Wen²⁾ Zhang Chao-Yu¹⁾
 Huang Ji-Feng¹⁾ Wang Guang-Xu¹⁾ Liu Jun-Lin¹⁾ Jiang Feng-Yi¹⁾

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

2) (LED Light Source and Lighting Research Center, Minnan Normal University, Zhangzhou 363000, China)

(Received 14 February 2015; revised manuscript received 5 May 2015)

Abstract

Due to the lack of GaN substrates, hetero-epitaxial growth of GaN thin films is usually carried out on a foreign substrate. There are three kinds of substrate for GaN: sapphire, silicon carbide, and silicon; the sapphire substrate is the chief one, currently. Due to the availability of large scale and low cost of Si substrates, in recent years, extensive research has been devoted to the development of gallium nitride (GaN) optoelectronic devices on silicon substrates. Because of the large lattice mismatch and thermal-expansion coefficient difference between Si and GaN, it is difficult to grow thick enough crack-free GaN LED film on Si substrates. The two main kinds of methods for overcoming the crack problem are using the patterned Si substrate and the thick AlGaIn buffer layer. Although the two techniques could solve the problem of crack by cooling after growth, they will lead to an increase in tensile stress for GaN on Si. When making vertical-structured LED devices by transferring the GaN-based LED thin films from Si substrate to a new submount, this tensile stress will be partially released; but few researches have been made about the stress change before and after the transfer of the film, although the stress in GaN is an important factor that alters the energy band structure and may influence the vibrational properties. In this paper, we grow the crack-free GaN-based LED films on patterned Si(111), then light-emitting diode (LED) thin films are successfully transferred from the original Si (111) substrate to the submount with a flexible layer, and then the LED films without the influence of the submount and substrate are fabricated. In the following experiments, the strain-stress variation of the LED film is determined by using nondestructive high resolution X-ray diffraction (HRXRD) in detail, and the variation of photoluminescence (PL) properties of the film is studied too. Results obtained are as follows: 1) When the LED film is transferred to the flexible submount, the huge tensile stress will turn into compressive stress, and the latter in the InGaIn layers will increase. 2) The In concentration in the (InGaIn/GaN) MQW (multi-quantum well) systems can be evaluated with the help of reciprocal space maps (RSM) around the symmetric (0002) and asymmetric (10 $\bar{1}$ 5) Bragg reflections. The In concentration in (InGaIn/GaN) MQW will reduce when the GaN-based LED film is transferred to the flexible submount. 3) The PL spectra of the LED films will obviously appear red shift, after they are transferred to the flexible submount.

Keywords: GaN, flexible submount, reciprocal space map, photoluminescence

PACS: 78.55.-m, 78.66.Fd, 61.05.C-, 62.40.+i

DOI: 10.7498/aps.64.177804

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51072076, 11364034, 61334001, 21406076, 61040060), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant Nos. 2011AA03A101, 2012AA041002), and the National Key Technology Research and Development Program of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2011BAE32B01).

† Corresponding author. E-mail: chuanbingxiong@126.com