物理学报 Acta Physica Sinica



Institute of Physics, CAS

具有石墨烯/铟锑氧化物复合透明电极的GaN发光二极管

郭伟玲 邓杰 王嘉露 王乐 邰建鹏

GaN-based light emitting diode with graphene/indium antimony oxide composite transparent electrode Guo Wei-Ling Deng Jie Wang Jia-Lu Wang Le Tai Jian-Peng 引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 68, 247303 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20190983 在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.68.20190983 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

等离子体表面处理对硅衬底GaN基蓝光发光二极管内置n型欧姆接触的影响

Effect of plasma surface treatment on embedded n-contact for GaN-based blue light-emitting diodes grown on Si substrate 物理学报. 2017, 66(4): 047801 https://doi.org/10.7498/aps.66.047801

石墨烯与金属的欧姆接触理论研究

Theoretical study on ohmic contact between graphene and metal electrode 物理学报. 2018, 67(21): 217301 https://doi.org/10.7498/aps.67.20181479

氢元素对铟镓锌氧化物薄膜晶体管性能的影响

Effects of hydrogen impurities on performances and electrical reliabilities of indium-gallium-zinc oxide thin film transistors 物理学报. 2018, 67(9): 098502 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180074

后退火处理对铟锡氧化物表面等离激元共振特性的影响

Effect of annealing treatment on characteristics of surface plasmon resonance for indium tin oxide 物理学报. 2018, 67(17): 177802 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180435

GaN/InxGa1-xN型最后一个量子势垒对发光二极管内量子效率的影响

Identifying the influence of GaN/InxGa1-xN type last quantum barrier on internal quantum efficiency for III-nitride based lightemitting diode

物理学报. 2017, 66(15): 158501 https://doi.org/10.7498/aps.66.158501

具有石墨烯/铟锑氧化物复合透明电极的 GaN 发光二极管^{*}

郭伟玲† 邓杰 王嘉露 王乐 邰建鹏

(北京工业大学,光电子技术教育部重点实验室,北京 100124)

(2019年6月26日收到; 2019年10月4日收到修改稿)

近年来, 石墨烯材料由于优异的光电性能获得了广泛关注, 并应用于发光二极管的透明电极以取代昂贵 的铟锑氧化物 (indium tin oxide, ITO) 透明电极, 但由于石墨烯与 p-GaN 功函数不匹配, 二者很难形成好的 欧姆接触, 因而造成器件电流扩展差和电压高等问题.本文将 ITO 薄层作为石墨烯透明电极与 p-GaN 间的 插入层, 以改善石墨烯与 p-GaN 层的欧姆接触. 所制备的石墨烯透明电极的方块电阻为 252.6 Ω/□, 石墨烯/ITO 复合透明电极的方块电阻为 70.1 Ω/□; 石墨烯透明电极与 p-GaN 层的比接触电阻率为 1.92 × 10⁻² Ω·cm², ITO 插入之后, 其比接触电阻率降低为 1.01 × 10⁻⁴ Ω·cm²; 基于石墨烯透明电极的发光二极管 (light emitting diode, LED), 在 20 mA 注入电流下, 正向电压为 4.84 V, 而石墨烯/ITO 复合透明电极 LED 正向电压降低至 2.80 V, 且光输出功率得到提高. 这归因于石墨烯/ITO 复合透明电极与 p-GaN 界面处势垒高度的降低, 进而 改善了欧姆接触; 另外, 方块电阻的降低, 使得电流扩展均匀性也得到了提高. 所采用的复合透明电极减少了 ITO 的用量, 得到了良好的欧姆接触, 为 LED 透明电极提供了一种可行方案.

关键词:透明电极,石墨烯,铟锑氧化物,比接触电阻率 **PACS**: 73.61.Ey, 73.40.-c, 71.20.Mq, 85.30.-z

DOI: 10.7498/aps.68.20190983

1 引 言

随着半导体技术的飞速发展,发光二极管 (light emitting diode, LED)具有高效节能、绿色 环保、寿命长等突出优点,逐渐成为替代传统光源 的第四代照明光源,并广泛应用于通用照明、汽车 照明和液晶显示面板的背光等领域^[1].

透明电极也称作电流扩展层^[2],是 LED 器件 的必要组成部分,它能够增强注入电流的扩展能 力,提高器件的光电特性和可靠性^[3]. 铟锑氧化物 (indium tin oxide, ITO),因其高导电率和透光率, 是现阶段 LED 透明电极的主要材料,然而由于 ITO 材料中铟的稀缺性, 导致价格昂贵, 且 ITO 具 有柔韧性差、在紫外区域 (波长小于 350 nm) 透射 率低于 40% 等缺点^[4], 因此需要选择新的替代材 料. 石墨烯作为一种蜂窝状二维薄膜, 因其拥有良 好的导电性、机械柔韧性、高透光性 (约为 97.7%) 以及相对低的成本^[5], 自 2004 年发现以来就广受 关注, 并认为在光子学和光电子学有巨大的发展潜 力^[6], 但在作为 LED 器件的透明电极方面, 石墨烯 功函数 (约为 4.21 eV) 较低, 不能与 p-GaN (功函 数约为 7.5 eV) 形成良好的欧姆接触, 从而造成 LED 的光电性能下降^[7]. 近年来, 基于石墨烯的复 合透明电极引发了广泛的关注和研究. 2014 年, Seo 等^[8]报道了一种 GaN 基近紫外 LED, 在 Ag

^{*} 国家重点研究发展计划 (批准号: 2017YFB0403100, 2017YFB0403102) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: guoweiling@bjut.edu.cn

^{© 2019} 中国物理学会 Chinese Physical Society

纳米团簇上引入二维石墨烯薄膜作为透明电极, 与传统的紫外透明电极相比,虽然光输出功率有了 明显的提高,但增加了一定的工作电压;2015年, Wu等^{9]}提出在石墨烯和 p-GaN 之间插入 NiO_x 层,得到的 NiO_x/石墨烯复合电极 LED 在 20 mA 注入电流下发光均匀,工作电压得到一定的改 善,但 NiO_x层透光率低,造成器件输出功率低. 2016年,Xun等^[10]报告了一种 ZnO 纳米棒石墨 烯 Ni/Au 混合透明电极的 LED 结构, Ni/Au 作为 石墨烯与 p-GaN 的插入层,在550 ℃ 空气条件中 退火,形成 NiO_x和 Au 纳米颗粒,改善石墨烯与 p-GaN 的欧姆接触.国内外研究的具有新型复合 透明电极^[11]LED 类型虽多,但普遍存在工作电压 较高,输出功率较低导致电流扩散不均匀的问 题^[12],不能满足市场对 LED 高效率的要求.

针对上述问题,本文设计了具有 ITO 薄层作 为石墨烯与 p-GaN 插入层的复合透明电极的 LED 器件,改善了石墨烯与 p-GaN 之间的欧姆接 触,并研究了透明电极的方块电阻以及透明电极 与 p-GaN 的接触电阻率;通过对器件的光电性能 的测试,发现石墨烯/ITO 复合透明电极 LED 相 比于石墨烯透明电极 LED,其光电性能均有所 提高.

2 实 验

实验中所用的外延片厚度为 6.4 μm, 由蓝宝 石衬底、17 nm 缓冲层、3 μm GaN 本征层、2.5 μm n-GaN 层、74 nm n-AlGaN 层、132 nm 多量子阱 (multiple quantum well, MQW)、40 nm 电子阻挡 层、92 nm p-GaN 层等构成. 石墨烯是化学气相沉 积法 (CVD) 铜基单层石墨烯, 为了方便转移, 其 表面涂覆了聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA).

首先制备透明电极,电子束蒸发 50 nm 厚度 的 ITO 薄膜,湿法转移石墨烯三次;然后使用圆点 传输线模型测量比接触电阻率 (外加偏压与穿过接 触面的电流密度的比值,衡量欧姆接触质量^[13])及 方块电阻 (正方形薄层在电流方向呈现的电阻,反 映膜层导电性的好坏^[14]);最后制备了两种不同 LED 芯片结构,即三层石墨烯作透明电极的 LED I (图 1(a))和三层石墨烯/ITO 作透明电极的 LED II (图 1(b)).图 1(c)为湿法转移石墨烯的光学显微镜 图.制备流程如下:生长 50 nm 的 ITO 层,使用电 感耦合等离子体 (inductive coupled plasma, ICP) 刻蚀台阶,刻蚀深度为 1.2 µm,湿法转移三层石墨 烯,最后溅射 P/N 金属电极 Ni/Au.



图 1 制备的 LED 器件的结构示意图 (a) 石墨烯透明电极 LED I; (b) 石墨烯/ITO 复合透明电极 LED II; (c) 湿法转移石墨烯 的光学显微镜图 (左侧阴影部分为石墨烯, 右侧为 ITO)

Fig. 1. Schematic diagram of the prepared LED device: (a) Graphene transparent electrode LED I; (b) graphene/ITO composite transparent electrode LED II; (c) optical micrograph of wet transfer graphene (graphene on the left and ITO on the right).

3 实验结果与讨论

3.1 透明电极的方块电阻以及透明电极 与 p-GaN 比接触电阻率的测量

比接触电阻率可以定量地反映金属电极和半导体材料之间欧姆接触质量^[15].采用圆点传输线 法测量透明电极与 p-GaN 之间的接触特性,图 2(a) 为圆点传输线模型,图 2(b)为样品图,在外延片表面制备一系列圆环结构,其中圆环的内半径均为 r₀,每个圆环外径 r_n从小到大依次增加为 r₁, r₂, r₃, r₄, r₅, r₆, 6个圆环为一组;图 2(b)中黑色部分 为去掉透明导电层后露出的 p-GaN 层,金色部分 自上而下为 Au 层、Ni 层和透明电极层.将探针分 别放置在圆环内外,施加测试电流,测量两端电压, 得出 R_T, 它由半导体材料的体电阻和圆环两侧的接触电阻构成, 分别测试 6 个圆环的 R_T, 表示为^[16]

$$R_{\rm T} = \frac{R_{\rm sh}}{2\pi} \left[\ln \left(\frac{r_n}{r_0} \right) + L_{\rm T} \left(\frac{1}{r_n} + \frac{1}{r_0} \right) \right], \quad (1)$$

其中, $R_{\rm sh}$ 为半导体材料的方块电阻; $L_{\rm T}$ 为传输长 度, 以 $\ln(r_n/r_0)$ 为横坐标, $R_{\rm T}$ 为纵坐标, 在坐标系 上画出 6 个点, 由于 r_n 和 r_0 相差很小, 可近似认 为 $r_n = r_0$, 因此 $L_{\rm T}$ ($1/r_n + 1/r_0$)为一常数, 因此 $R_{\rm T}$ - $\ln(r_n/r_0)$ 是一条直线, 其斜率为 $R_{\rm sh}/2\pi$, 纵坐 标截距为 $R_{\rm sh}L_{\rm T}/\pi r_0$, 由此得出 $L_{\rm T}$. 而方块电阻 $R_{\rm sh}$ 和接触电阻率 $\rho_{\rm c}$ 的关系为^[17]

$$\rho_{\rm c} = L_{\rm T}^2 R_{\rm sh}.\tag{2}$$

由于实际制备的圆环尺寸与光刻板尺寸有差 距,需要测量实际样品的圆环内外半径 r_n和 r₀,使 用 matlab 软件拟合直线,得到直线的斜率和截距, 求出方块电阻 R_{sh}和比接触电阻率 ρ_c,在样品表面 不同位置,测量多组数值取平均,结果如表 1 所列. 石墨烯透明电极方块电阻值为 252.6 Ω/□,其与



图 2 圆点传输线模型 (a)模型示意图; (b)测试样品图 Fig. 2. Dot circular transmission line model (dot-CTLM): (a) Model diagram; (b) test sample.

表 1 复合透明电极方块电阻及其与 p-GaN 比接 触电阻率的测量结果

Table 1. Composite transparent electrode sheet resistance and its measurement results of contact resistivity with p-GaN.

| 透明电极类型 | 方块电阻 | 比接触电阻率 |
|---------|--------------------------------------|-------------------------------------|
| | $R_{\rm sh}/\Omega\cdot\square^{-1}$ | $ ho_{ m c}/\Omega{\cdot}{ m cm}^2$ |
| 石墨烯 | 252.6 | 1.92×10^{-2} |
| 石墨烯/ITO | 70.1 | $1.01	imes10^{-4}$ |

p-GaN 的比接触电阻率为 $1.92 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}^2$; 石 墨烯/ITO 复合透明电极的方块电阻为 70.1 Ω/\Box , 比接触电阻率为 $1.01 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$,相比前者,其 方块电阻以及与 p-GaN 接触电阻率均有降低.说 明 ITO 插入层能提高透明电极的导电性并且改善 石墨烯与 p-GaN 的接触特性.

3.2 复合透明电极 LED 性能测试

图 3 是 LED I 和 LED II 的 *I*-V 曲线图,芯片 尺 寸 为 44 mil × 10 mil (1 mil = 0.0254 mm), LED I 和 LED II 在 20 mA 电流下工作电压分别 为 4.84 V 和 2.80 V,工作电压降低了 42%.



图 3 大电流下, LED I 与 LED II 的 *I-V*测试曲线 Fig. 3. *I-V* curves of LED I and LED II under high current.

根据 Shah 等^[18] 提出的模型, 对图 3 进行 ln*I*-V曲线处理后的斜率得器件的理想因子^[19]. 通过 对 ln*I*-V的拟合,得出 LED I 的理想因子为 3.24, LED II 的理想因子为 2.67, LED II 的理想因子相 比 LED I 更低,是由于 ITO 插入层改善了石墨烯 与 p-GaN 之间的欧姆接触,降低了二者的势全高 度,减小了 LED 的串联电阻^[20],使得 LED II 的开 启电压更低.

图 4 是两种透明电极 LED 在注入 20 mA 电流下的发光效果,可以看出,两个器件都能均匀发光,图 4(b)更亮;图 5 是对未封装的蓝光裸芯进行测试,通过探针施加 5,10,20,30 和 40 mA 电流,得到不同电流下 LED 光谱对比图,内插图为半高宽随电流的变化,随着电流的增加,LED I 和 LED II 的强度均增加,半高宽也随之增加,但在相同电流,LED II 的光谱面积和半高宽大于 LED I,说明LED II 的发光性能更好^[21];图 6 是不同电流下两种器件辐射通量对比图,在小电流下两种 LED 的

辐射通量相差较小, 而当电流增加时, 两者辐射通量相差逐渐增大. 这是因为石墨烯/ITO 复合透明电极的方块电阻远远小于石墨烯的方块电阻, 当 LED 的注入电流增加时, 石墨烯/ITO 复合透明电极的电流扩展较石墨烯更均匀, 发光效率更高.



图 4 LED 发光光学照片 (a) LED I; (b) LED II Fig. 4. Optical graphs of LEDs: (a) LED I; (b) LED II.



图 5 LED I 与 LED II 的光谱图 (内插图为半高宽随电流的变化)

Fig. 5. Spectrum of LED I and LED II. Inset shows the curves of the FWHM with current.



图 6 LED I与 LED II 辐射通量随电流变化对比图 Fig. 6. Comparison of radiant flux of LED I and LED II.

4 结 论

设计制备了以 ITO 为插入层的石墨烯/ITO 复合透明电极 GaN LED,并对透明电极的方块电 阻、与 p-GaN 的比接触电阻率进行了表征,结果表

明 ITO 插入层降低了方块电阻,改善了与 p-GaN 的欧姆接触,透明电极与 p-GaN 接触电阻率由 1.92 × 10⁻² Ω·cm² 降低至 1.01 × 10⁻⁴ Ω·cm²; 所 制备的复合透明电极 LED 在 20 mA 电流下的工 作电压由 4.84 V 降低至 2.8 V,器件工作电压降低 了 42%,同时其发光强度、辐射通量也有所提高,这是由于 ITO 较石墨烯具有更高的功函数, ITO 的插入降低了石墨烯与 p-GaN 界面处肖特基势垒 高度,同时复合透明电极方块电阻的降低,使得器 件的电流扩展更均匀.

参考文献

- [1] Dupuis R D, Krames M R 2008 J. Lighwave Technol. 26 1154
- [2] Guo D Y, Li P G, Chen Z W, Wu Z P, Tang W H 2019 Acta Phys. Sin. 68 078501 (in Chinese) [郭道友, 李培刚, 陈政委, 吴 真平, 唐为华 2019 物理学报 68 078501]
- [3] Li Z C, Chen Z M, Zou G R X, Ye X L, Cao Y 2019 Acta Phys. Sin. 68 158505 (in Chinese) [黎振超, 陈梓铭, 邹广锐兴, 叶轩立, 曹鏞 2019 物理学报 68 158505]
- [4] Kim B J, Yang G, Kim H Y, Baik K H, Mastro M A, Hite J K, Eddy C R, Ren F, Pearton S J, Kim J 2013 Opt. Express 21 29025
- [5] Lee J M, Jeong H Y, Choi K J, Park W 2011 Appl. Phys. Lett. 99 41115
- [6] Bonaccorso F, Sun Z, Hasan T, Ferrari A C 2010 Nature Photon. 4 611
- [7] Pu X Q, Wu J, Guo Q, Cai J Z 2018 Acta Phys. Sin. 67 217301 (in Chinese) [蒲晓庆, 吴静, 郭强, 蔡建臻 2018 物理学 报 67 217301]
- [8] Seo T H, Kim S J, Kim M J, Kim H S, Suh E K 2014 J. Phys. D: Appl. Phys. 47 215103
- [9] Wu C, Liu F, Liu B, Zhuang Z, Dai J P, Tao T, Zhang G, Xie Z L, Wang X R, Zhang R 2015 Solid State Electron. 109 47
- [10] Xun K, Xie Y Y, Ma H L, Du Y X, Zeng F G, Ding P, Gao Z Y, Xu C, Sun J 2016 Solid State Electron. 126 5
- [11] Youn D H, Yu Y J, Chio H K, Kim S K, Chio S Y, Chio C G 2013 Nanotechnology 24 075202
- [12] Xu K, Xu C, Deng J, Zhu Y X, Guo W L, Mao M M, Zheng L Sun J 2013 Appl. Phys. Lett. 102 162102
- [13] Zhen C M, Li X L, Pan C F, Nie C F, Wang Y Y 2005 *College Phys.* 06 10 (in Chinese) [甄聪棉, 李秀玲, 潘成福, 聂 向富, 王印月 2005 大学物理 06 10]
- [14] Ma X Y, Chen X, Liao Y F, Xiao Q Q, Chen Q, Yao Z W, Xie Q 2017 Low Temp. Phys. Lett. 39 16 (in Chinese) [马新 字, 陈茜, 廖杨芳, 肖清泉, 陈庆, 姚紫祎, 谢泉 2017 低温物理学 报 39 16]
- [15] Yan G M, Li C, Tang M R, Huang S H, Wang C, Lu W F, Huang W, Lai H K, Chen S Y 2013 Acta Phys. Sin. 62 167304 (in Chinese) [严光明, 李成, 汤梦饶, 黄诗浩, 王尘, 卢卫 芳, 黄巍, 赖虹凯, 陈松岩 2013 物理学报 62 167304]
- [16] Wu D F, Yang B D 1989 Principle, Test and Process of Ohmic Contact at Metal-semiconductor Interface (Shanghai: Shanghai Jiaotong University Press) pp36-39 (in Chinese) [吴 鼎芬, 颜本达 1989 金属-半导体界面欧姆接触的原理、测试与工 艺 (上海: 上海交通大学出版社) 第36—39页]

- [17] Hao Y, Marc S, Tom S, Erik R, Koen M, Steven D, Naoto H, Kathy B, Nadine C, Kristin D M 2015 *IEEE Electron Device Lett.* 36 1
- [18] Shah J M, Li Y L, Gessmann T, Schubert E F 2003 J. Appl. Phys. 94 2627
- [19] Liu J P, Zhu Y X, Guo W L, Yang W W, Wu G Q 2012 Acta

Sin. 68 148103 (in Chinese) [吴晨晨, 郭相东, 胡海, 杨晓霞, 戴 W, Wu G Q 2012 Acta 庆 2019 物理学报 68 148103]

微微, 吴国庆 2012 物理学报 61 137303]

[20] Guo X, Schubert E F 2001 Appl. Phys. Lett. 78 3337

Phys. Sin. 61 137303 (in Chinese) [刘建朋, 朱彦旭, 郭伟玲, 闫

[21] Wu C C, Guo X D, Hu H, Yang X X, Dai Q 2019 Acta Phys.

GaN-based light emitting diode with graphene/indium antimony oxide composite transparent electrode^{*}

Guo Wei-Ling[†] Deng Jie Wang Jia-Lu Wang Le Tai Jian-Peng

(Optoelectronics Technology Lab. Ministry of Education, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China) (Received 26 June 2019; revised manuscript received 4 October 2019)

Abstract

In recent years, graphene has received wide attention due to its excellent optoelectronic properties and has been applied to transparent electrodes of light-emitting diodes to replace the scarce and expensive indium antimony oxide (ITO), which is a typical current spreading layer in lateral GaN LED. However, there are some problems in graphene transparent electrode, such as the mismatch between graphene work function and p-GaN work function, and difficult-to-form good Ohmic contact with p-GaN, resulting in poor current expansion and high voltage of devices. In this paper, a thin ITO layer is used as an insertion layer between a three-layer graphene transparent electrode and and p-GaN, thereby improving the Ohmic contact between them. And a three-layer graphene/ITO composite transparent electrode LED is prepared and also compared with the pristine three-layer graphene LED. The thickness of ITO is only 50 nm, which is much thinner than the thickness of ITO in conventional LED. The sheet resistance of the prepared three-layer pristine graphene transparent electrode is 252.6 Ω/\Box , and the sheet resistance of the three-layer graphene/ITO composite transparent electrode is reduced to 70.1 Ω/\Box . The specific contact resistance between the three-layer pristine graphene transparent electrode and the p-GaN layer is $1.92 \times 10^{-2} \ \Omega \cdot cm^2$, after the ITO being inserted, the specific resistance is reduced to $1.01 \times 10^{-4} \ \Omega \cdot \text{cm}^2$. Based on the three-layer graphene transparent electrode LED, the forward voltage is 4.84 V at an injection current of 20 mA, while the forward voltage of the three-layer graphene/ITO composite transparent electrode LED is reduced to 2.80 V; under small currents, the ideal factor of the three-layer graphene/ITO composite transparent electrode LED is less than that of the three-layer graphene transparent electrode LED. In addition, with the current increasing, the luminous intensity of the three-layer graphene/ITO composite transparent electrode LED increases, so does the radiant flux, which is because the addition of the ITO thin layer reduces the barrier height at the interface between the three layers of graphene and p-GaN, and the sheet resistance of the composite transparent electrode is also reduced, thereby improving the Ohmic contact between graphene and p-GaN. At the same time, the current spread is more uniform. The composite transparent electrode uses the much less ITO and obtains better optoelectronic performance, and thus providing a feasible solution for the LED transparent electrode.

Keywords: transparent electrode, graphene, indium antimony oxide, specific contact resistivity

PACS: 73.61.Ey, 73.40.-c, 71.20.Mq, 85.30.-z

DOI: 10.7498/aps.68.20190983

^{*} Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2017YFB0403100, 2017YFB0403102).

[†] Corresponding author. E-mail: guoweiling@bjut.edu.cn