

利用单层密排的纳米球提高发光二极管的出光效率

陈湛旭 万巍 何影记 陈耿炎 陈泳竹

Light-extraction enhancement of GaN-based LEDs by closely-packed nanospheres monolayer

Chen Zhan-Xu Wan Wei He Ying-Ji Chen Geng-Yan Chen Yong-Zhu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 148502 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.148502

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.148502>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I14>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用温变电容特性测量发光二极管结温的研究

Junction temperature measurement of light-emitting diodes using temperature-dependent capacitance

物理学报.2015, 64(11): 118501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.118501>

晶圆键合和激光剥离工艺对 GaN 基垂直结构发光二极管芯片残余应力的影响

Effect of wafer bonding and laser liftoff process on residual stress of GaN-based vertical light emitting diode chips

物理学报.2015, 64(2): 028501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.028501>

光致电化学法提高垂直结构发光二极管出光效率的研究

Increase in light extraction efficiency of vertical light emitting diodes by a photo-electro-chemical etching method

物理学报.2015, 64(1): 018501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.018501>

基于反应动力学的 GaN LED 参数退化模型的研究

The investigation of LED degradation model based on the chemical kinetics

物理学报.2013, 62(21): 218503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.218503>

白光发光二极管用红色荧光粉 $\text{LiSrBO}_3:\text{Eu}^{3+}$ 的制备与发光性能研究

Preparation and photoluminescence of $\text{LiSrBO}_3:\text{Eu}^{3+}$ red-emitting phosphors for white leds

物理学报.2013, 62(10): 108504 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.108504>

利用单层密排的纳米球提高发光二极管的出光效率*

陈湛旭¹⁾ 万巍^{1)†} 何影记¹⁾ 陈耿炎²⁾ 陈泳竹²⁾

1) (广东技术师范学院电子与信息学院, 广州 510665)

2) (广东技术师范学院机电学院, 广州 510665)

(2015年2月26日收到; 2015年4月13日收到修改稿)

在发光二极管(LED)的透明电极层上制作单层六角密排的聚苯乙烯(polystyrene, PS)纳米球, 研究提高GaN基蓝光LED的出光效率. 采用自组装的方法在透明电极锡氧化物层上制备了直径分别约为250, 300, 450, 600和950 nm的PS纳米球, 并且开展了电致发光的研究. 结果表明, 在LED的透明电极层上附有PS纳米球能有效地提高LED的出光效率; 当PS纳米球的直径与出射光的波长比较接近时, LED的出光效率最优. 与参考样品相比, 在20 mA和150 mA工作电流下, 附有PS纳米球的样品的发光效率分别增加1.34倍和1.25倍. 三维时域有限差分方法计算表明, 该出光增强主要归因于附有PS纳米球的LED结构可以增大LED结构的光输出临界角, 从而提高LED的出光效率. 因此, 这是一种低成本的实现高效率LED的方法.

关键词: 发光二极管, 纳米球层, 电致发光, 出光效率

PACS: 85.60.Jb, 81.16.Rf, 78.60.Fi

DOI: 10.7498/aps.64.148502

1 引言

氮化镓(GaN)基发光二极管(light emitting diode, LED)由于发光波长范围比较广, 已经广泛应用于固态光源、信号指示和显示等领域, 是目前研究的热点^[1,2]. 然而, LED的发光效率依然较低, 这一缺点使得LED器件的性能不能令人满意. 而较低的出光效率是由于半导体材料与周围空气存在较大的折射率差, 大多数光子在界面会发生全反射, 被材料再吸收或者形成波导模, 最终只有少数的光子能出射到空气中^[3], 这严重地制约了LED的应用与发展. 为了解决上述问题, 人们发展了许多方法来提高LED的出光效率, 例如芯片倒装技术^[4]、纳米图形化表面技术^[5-7]、利用电极反射^[8]和制作光子晶体^[9-11]等.

一般而言, 利用微纳米技术制备微纳米结构,

从而增大光输出的临界角、破坏LED材料界面的全反射是直接提高LED出光效率的方法. 常见的微纳米技术包括纳米球掩模刻蚀^[12]、镍纳米颗粒掩膜刻蚀^[13]、激光全息掩膜刻蚀^[14]、电子束刻蚀^[15]和纳米压印刻蚀^[16]方法等. 然而, 这些刻蚀工艺往往会影响器件的电学特性, 从而导致器件的漏电电流较高^[17,18]. 为了解决上述问题, 一些研究小组致力于寻找不用刻蚀工艺的纳米结构制备技术, 譬如, Jeong等^[19]在已经图形化蓝宝石衬底的LED表面制备了ZnO纳米棒阵列, 从而成为一种渐变折射率的介质层, 最终样品获得大约30%的光输出增强; Ye等^[20]在垂直结构的LED的n型GaN表面制备ZnO纳米棒结构, 也获得接近3倍的光输出增强. 与上述纳米结构相比, 周期性的介质纳米球阵列具有独特的光学特性, 特别是光波长量级尺寸的纳米球在低阶共振时具有较宽频带的光

* 国家自然科学基金(批准号: 11174061, 11404067, 61475038, 11447181)和广东省自然科学基金(批准号: S2013010015795)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wanwei0615@126.com

吸收特性^[21,22], 这非常适合用来提高LED的出光效率, 从而引起了人们的研究兴趣^[23,24]. 聚苯乙烯(polystyrene, PS)纳米球具有成本低、尺寸差异小(偏差小于5%)等特点, 可以在LED结构上大面积单层制备^[25], 是一种比较理想的光散射介质. 然而, 在LED结构上制备PS纳米球, 并且开展电致发光的研究却很少见报道. 此外, 对于特定波长的LED芯片, 确定一种萃取效率最优的纳米球尺寸也是非常重要的.

蓝宝石衬底的GaN基LED的出光面主要是透明电极部分, 本研究主要是在蓝宝石衬底的GaN基蓝光LED的透明电极上制作直径不同的单层六角密排的PS纳米球, 周期性的PS纳米球能增大LED结构的逃逸光锥, 可以有效地把波导耦合出来, 从而提高LED的出光效率. 为了研究纳米球尺寸对出光效率的影响, 实验采用自组装的方法在LED的透明电极锡铟氧化物(indium tin oxide, ITO)上分别制作单层有序的直径约为250, 300, 450, 600和950 nm的PS纳米球, 周期性的PS纳米球阵列具有二维晶格衍射特性. 实验结果表明, 与普通的LED相比, 附有PS纳米球的样品的出光效率有明显的增强, 并且当PS纳米球的直径与出射光的波长比较接近时, 样品的出光效率最优. 在20 mA和150 mA工作电流条件下, 附有最优尺寸的PS纳米球样品的出光效率可分别增加1.34倍和1.25倍. 三维时域有限差分方法(finite difference time-domain, FDTD)模拟表明, 该出光增强源于表面的周期性PS纳米球作为一层纳米光栅衍射介质, 可以把LED芯片临界角外的光子有效地耦合出去, 从而提高LED的光出射临界角, 提高LED的出光效率.

2 实验方法

普通GaN基LED附有单层PS纳米球层的结构如图1(a)所示. 从下而上依次是蓝宝石衬底, 2 μm 的非掺杂GaN, 3 μm 的n型GaN, 中间是发光的5个周期的有源层InGaN/GaN多量子阱(multiple quantum wells, MQW)结构, 上面是大约150 nm的p型掺杂GaN, 样品的发光波长在465 nm左右. 表面是ITO透明电极, 作为p-GaN的电流扩展层. 我们在实验中制作的是300 μm \times 300 μm 的小芯片, 在LED基片镀上约400 nm的透明电极ITO后, 需要进行常规的加厚电极处理. 常规的加厚电极步骤包括: 第一次光刻 \rightarrow 湿法刻蚀ITO \rightarrow ICP刻蚀GaN \rightarrow 去胶 \rightarrow 热退火 \rightarrow 第二次光刻 \rightarrow 蒸镀厚金Cr/Pd/Au(厚度分别为200/400/2000 nm) \rightarrow 去胶等, 制备的LED样品如图1(a)所示.

制作完厚金电极后, 再在LED的ITO表面制作单层密排的PS纳米球(折射率约为1.59). 步骤如下: 首先, 将稀释的PS纳米球溶液滴在水面上, 使得单分散性的PS纳米球漂浮在水面上; 其次, 滴入表面活性剂十二烷基硫酸钠溶液改变水的表面张力, 使原先分散排布的聚苯乙烯胶体微球聚集并自组装地呈六角密排阵列, 形成单层微球膜; 然后, 用LED芯片将此膜捞起, 从而在基底上形成二维胶体晶体结构, 加热固化; 最后, 在LED的ITO层表面获得单层的PS纳米球结构. 图1(b)是实验中获得的直径大约为450 nm的单层的PS纳米球扫描电镜(SEM)图.

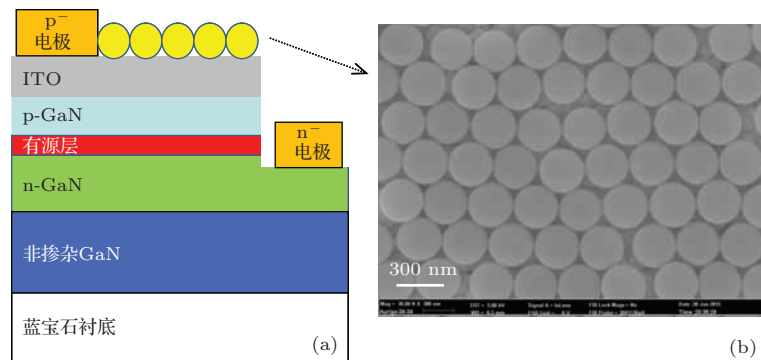


图1 (a) GaN基蓝光LED的透明电极ITO层附有PS纳米球的结构示意图; (b) 直径为450 nm的PS纳米球的电镜图

Fig. 1. (a) Schematic illustration of the GaN-based blue LEDs with closely-packed polystyrene sphere; (b) SEM image of polystyrene sphere with a diameter of 450 nm on the ITO layer.

3 实验结果与分析

为了研究纳米球尺寸对LED出光效率的影响,我们在LED的ITO层表面分别制作直径不同的PS纳米球层.图2为不同尺寸的PS纳米球的SEM图.可以看出,PS纳米球的大小分布比较均匀,球形结构较好,除了少许缺陷外,PS纳米球基本上是单层密排在一起,形成了六角密排的周期性结构.实验中,一个2英寸的LED基片被分成六个部分从而分别制备六种样品,其中A样品是普通结构的LED,作为参考样品;B—F样品上面分别制作了直径大约为250, 300, 450, 600和950 nm的单层PS纳米球,其形貌分别如图2(a)—(d)所示.

图3(a)是实验LED样品的电流-光强曲线,可以看出,在相同电流的条件下,附有单层PS纳米球的样品B—F的出光强度比参考样品A要强.例如,在电流为20 mA时,样品B—F的光强分别增加1.14, 1.24, 1.34, 1.20和1.17倍.而在电流为150 mA时,样品B—F的光强分别增加1.08, 1.16, 1.25, 1.14和1.13倍,比20 mA电流时的增加倍数要小些,其原因可能是由于纳米球阵列对样品的散热有一定的影响,在大电流时表现更加明显,因此导致出光增强倍数略小些.由实验结果可以看

出,随着PS纳米球的直径增大,其出光效率也在不断增大;在PS纳米球的直径为450 nm时其出光效率最大,这时纳米球的尺寸与出射光的波长最接近.但是,随着PS纳米球的直径进一步增大,例如当PS纳米球的直径为600 nm和950 nm时,其出光效率有变小的趋势.图3(b)是上述样品的伏安特性曲线,可以看出,上述样品的曲线趋势基本相同,在实验误差的范围内,附有PS纳米球的样品的曲线基本重合,但是,与参考样品相比,在相同的电流情况下,附有PS纳米球的样品的电压略大一点.一般而言,该方法不存在类似干法刻蚀那样破坏样品电学特性从而引入附加电阻,因此,该附加电阻可能是由于附加的接触电阻造成的.由于我们采用的是扎探针方式来测量光强,扎探针的位置与接触等因素可能会导致一定的测量误差,尤其是在接触电极的表面也有PS纳米球时.因此,在利用探针施加电流时,其接触电阻和参考样品相比要大一些.上述工艺还可以进一步改进,从而避免产生附加接触电阻,例如在制备单层PS纳米球之前,可以用光刻方法在电极部分沉积几十纳米的二氧化硅或者金属作为电极保护层,然后再制备单层的PS纳米球,最后用酸把保护层去掉,这样电极上的PS纳米球也会被去掉.

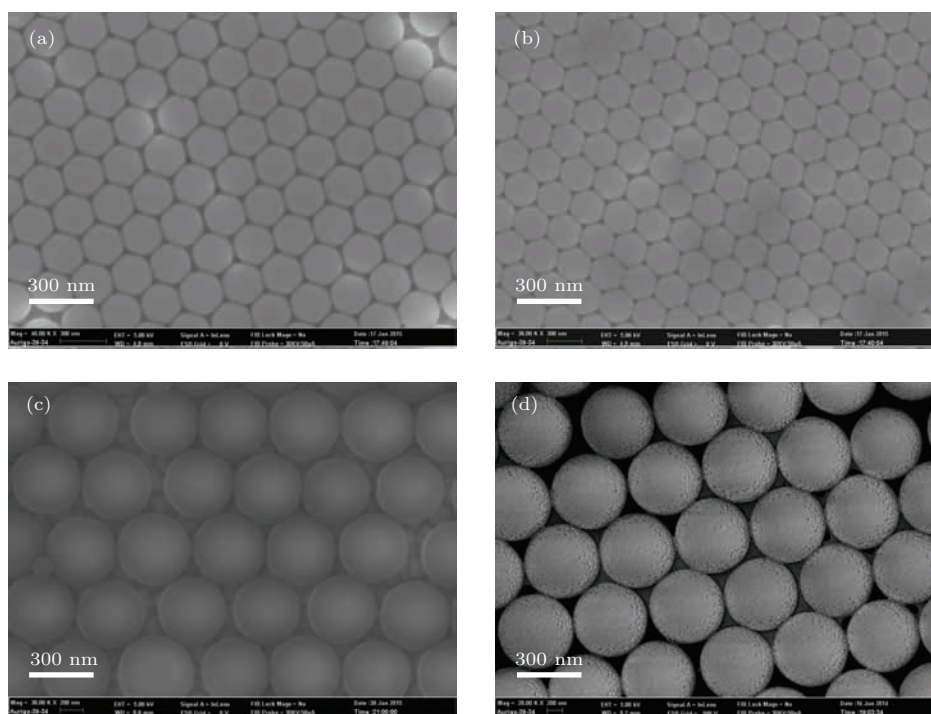


图2 在LED的ITO层上制作的直径不同的单层PS纳米球SEM图 (a) 250 nm; (b) 300 nm; (c) 600 nm; (d) 950 nm
Fig. 2. SEM image of the polystyrene sphere formed onto the ITO layer with different sizes: (a) 250 nm, (b) 300 nm, (c) 600 nm, and (d) 950 nm.

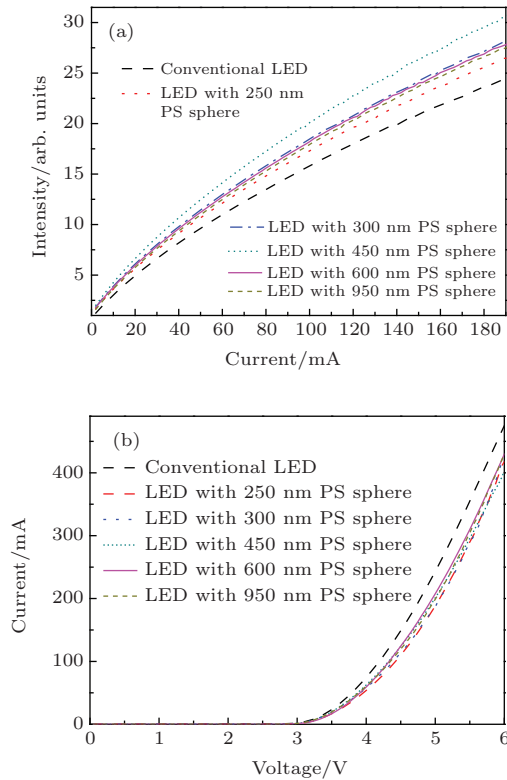


图3 ITO透明电极层附有PS纳米球的样品与参考样品的光强-电流曲线(a)和伏安特性曲线(b)

Fig. 3. Electroluminescence curves of GaN-based LEDs with and without polystyrene sphere: (a) the optical output power versus injection current characteristics; (b) the current versus voltage.

由上述结果可以得到两个结论: 第一, 在LED的透明电极ITO层上附有PS纳米球可以提高LED的出光效率; 第二, 当PS纳米球的直径与出射光的波长比较接近时, 其出光效率最优. 样品出光效率的增加一般认为主要来自两方面的原因: 第一, 周期性的PS纳米球阵列可以看作是二维的纳米介质光栅, 通过近场耦合, 可以有效地把部分无法出射的波导模从ITO层耦合到PS纳米球阵列, 再散射出去^[21]; 第二, 由于PS纳米球的尺寸与发光波长接近, 那么这些粒子可以看作是光的有效散射源, 可以改变光的传播方向, 同样也可以把部分波导模耦合出去, 从而实现纳米图形化LED表面的作用^[23]. 如图4(a)所示, 对于无纳米结构的ITO层, 在ITO层与空气的交界面上, 全反射现象将会抑制入射角大于临界角的光出射到空气中, 由于光是从GaN出射经过ITO最后到空气中, 所以全反射的临界角可以由斯涅耳定律计算得到: $\sin \theta_c = n_2/n_1$, 其中 n_1 为介质GaN的折射率, n_2 为出射介质空气的折射率. 取 $n_1 = 2.495$, $n_2 = 1$, 可以计算得到 $\theta_c = 23.6^\circ$, 这意味着只有局域在半

锥角的光才能出射. 而对于附有周期性的PS纳米球结构的ITO层, 其出光效果如图4(b)所示, 一方面是单层的纳米球具有波长级别表面粗化的效果, 另一方面是该周期性的结构具有光栅衍射效应, 因此可以把介质中的波导模耦合到空气中去, 从而提高LED结构的出光效率.

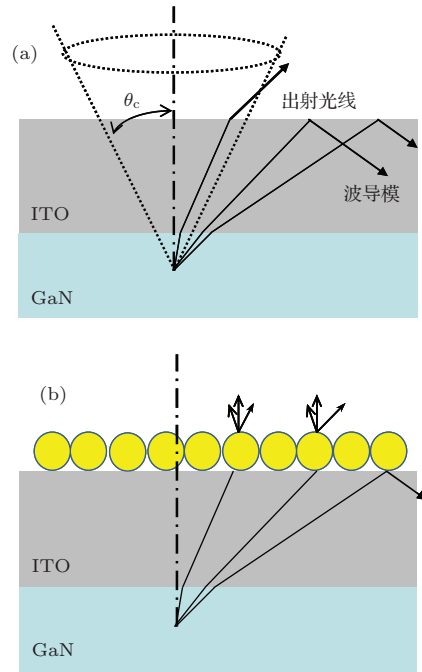


图4 (a)平面LED结构出光示意图; (b)附有周期性单层PS球后LED结构出光示意图

Fig. 4. Light-ray dynamics for the plane LEDs structure and for the ITO layer with polystyrene sphere: (a) light-ray traces in the plane LEDs structure; (b) light-ray traces in the ITO layer with polystyrene sphere.

为了进一步分析其增强机理, 采用三维FDTD计算相关结构的透射谱. 模拟结构如图4所示, 入射光的波长取LED的发光主波长465 nm, 纳米球的直径取450 nm, GaN, ITO和PS纳米的折射率分布为2.5, 1.9和1.59. 分别考虑入射光的S偏振和P偏振的情况, 最终得到附有PS纳米球结构与无PS纳米球结构的透射谱, 如图5所示. 对于无PS纳米球结构(参考样品), 透射谱在入射角大于 24° 的透过率均为零, 这说明大于临界角的光无法从LED结构逃逸出来. 而附有直径为450 nm的PS纳米球的结构, 在LED结构的临界角外有几个比较显著的透射峰, 并且在入射光为S偏振和P偏振的情况下都有透射峰出现, 这说明附有与入射光波长相近的PS纳米球的LED结构可以把LED结构的波导模耦合出来, 从而提高LED的出光效率.

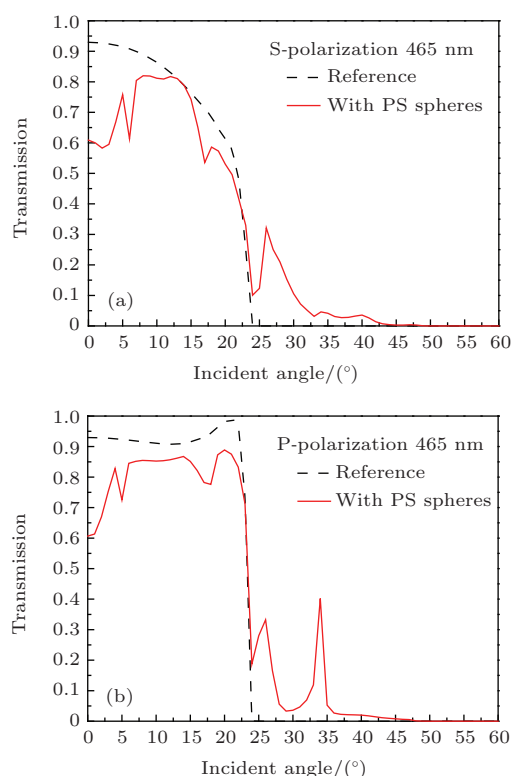


图5 三维 FDTD 计算的无 PS 纳米球 LED 结构与附有 PS 纳米球 LED 结构的透射谱, 入射光的波长为 465 nm, 纳米球的直径为 450 nm (a) S 偏振入射光的透射谱; (b) P 偏振入射光的透射谱

Fig. 5. The three-dimensional FDTD simulations of transmission spectra with the wavelength of 465 nm for plain GaN-based LEDs structure (black dashed lines), and LEDs structure covered with a monolayer of polystyrene nanospheres with the diameter of 450 nm (red solid lines). The simulations with S- and P-polarizations are shown in (a) and (b), respectively.

4 结 论

用自组装方法在 LED 的透明电极表面制作了直径不同的单层六角密排的 PS 纳米, 开展了电致发光的研究. 结果表明, 在 LED 的透明电极层上附有 PS 纳米球可以提高 LED 的出光效率, 当 PS 纳米球的直径与出射光的波长比较接近时, 样品的出光效率最好. 在 20 mA 和 150 mA 工作电流条件下, 附有 450 nm 的 PS 纳米球的样品的最大发光强度增强 1.34 倍和 1.25 倍. 该出光增强归因于周期性 PS 纳米球结构可以破坏 ITO 表面的全反射, 从而增大逃逸光锥, 提高 LED 的出光效率. 因此, 这是一种低成本而有效实现较高效率 LED 的方法.

参考文献

- [1] Schubert E F, Kim J K 2005 *Science* **308** 1274
- [2] Okamoto K, Kawakami Y 2009 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **15** 1199
- [3] Lin C F, Zheng J H, Yang Z J, Dai J J, Lin D Y, Chang C Y, Lai Z X, Hong C S 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 083121
- [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] An H M, Sim J I, Shin K S, Sung Y M, Kim T G 2012 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **48** 891
- [6] Park J H, Park J W, Park I K, Park Il-K, Kim D Y 2012 *Appl. Phys. Express* **5** 022101
- [7] Huang S M, Yao Y, Jin C, Sun Z, Dong Z J 2008 *Displays* **29** 254
- [8] Kim J K, Gessmann T, Schubert E F, Xi J Q, Luo H, Cho J, Sone C, Park Y 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 013501
- [9] Lai C F, Chao C H, Kuo H C, Yen H H, Lee C E, Yeh W Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 123106
- [10] Kim J Y, Kwon M K, Lee K S, Park S J, Kim S H, Lee K D 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 181109
- [11] Gao H, Kong F M, Li K, Chen X L, Ding Q A, Sun J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 127807 (in Chinese) [高晖, 孔凡敏, 李康, 陈新莲, 丁庆安, 孙静 2012 物理学报 **61** 127807]
- [12] Chen Z X, Ren Y, Xiao G H, Li J T, Chen X, Wang X H, Jin C J, Zhang B J 2014 *Chin. Phys. B* **23** 018502
- [13] He A H, Zhang Y, Zhu X H, Chen X W, Fan G H, He M 2010 *Chin. Phys. B* **19** 068101
- [14] Kim D H, Cho C O, Roh Y G, Jeon H, Park Y S, Cho J, Im J S, Sone C, Park Y, Choi W J, Park Q H 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 203508
- [15] Chen A, Chua S J, Chen P, Chen X Y, Jian L K 2006 *Nanotechnology* **17** 3903
- [16] Peng J, Xu Z M, Wu X F, Sun T Y 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 036104 (in Chinese) [彭静, 徐智谋, 吴小峰, 孙堂友 2013 物理学报 **62** 036104]
- [17] Cao X A, Pearton S J, Zhang A P, Dang G T, Ren F, Shul R J, Zhang L, Hickman R, van Hove J M 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 2569
- [18] Kim J Y, Kwon M K, Park S J, Kim S H, Lee K D 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 251103
- [19] Jeong H, Park D J, Lee H S, Ko Y H, Yu J S, Choi S B, Lee D S, Suh E K, Jeong M S 2014 *Nanoscale* **6** 4371
- [20] Ye B U, Kim B J, Song Y H, Son J H, Yu H K, Kim M H, Lee J L, Baik J M 2012 *Adv. Funct. Mater.* **22** 632
- [21] Zhu Z C, Liu B, Cheng C W, Chen H, Gu M, Yi Y S, Mao R H 2014 *Phys. Status Solidi A* **211** 1583
- [22] Yao Y, Yao J, Nnarasimhan V K, Ruan Z, Xie C, Fan S, Cui Y 2012 *Nature Commun.* **3** 664
- [23] Fang C Y, Liu Y L, Lee Y C, Chen H L, Wan D H, Yu C C 2013 *Adv. Funct. Mater.* **23** 1412
- [24] Lee H K, Ko Y H, Rama Raju G S, Yu J S 2012 *Opt. Express* **20** 25058
- [25] Chen X, Liang Z H, Chen Z X, Yang W M, Chen T F, Jin C J, Zhang B J 2013 *Chin. Phys. B* **22** 048101

Light-extraction enhancement of GaN-based LEDs by closely-packed nanospheres monolayer*

Chen Zhan-Xu¹⁾ Wan Wei^{1)†} He Ying-Ji¹⁾ Chen Geng-Yan²⁾ Chen Yong-Zhu²⁾

1) (School of Electronic and Information, Guangdong Polytechnic Normal University, Guangzhou 510665, China)

2) (College of Electromechanical Engineering, Guangdong Polytechnic Normal University, Guangzhou 510665, China)

(Received 26 February 2015; revised manuscript received 13 April 2015)

Abstract

GaN based light-emitting diodes (LEDs) have been attracting a great deal of interest due to their capability in emitting a spectrum from ultraviolet to green and their applications in traffic signals, displays and solid-state lighting. However, the high efficiency of LED is still obstructed by light-extraction efficiency. In this work, we propose that light-extraction efficiency of GaN-based blue LED should be improved by a self-assembled monolayer of polystyrene spheres. The GaN-based LED grown on sapphire substrate emits the light mainly from the indium tin oxide (ITO) transparent electrode. And the hexagonal closely-packed polystyrene sphere monolayer is formed onto the ITO layer. In order to study the light-extraction efficiency affected by the size of nanosphere, nanosphere monolayers of different sizes are prepared onto the ITO layer, and the diameters of the polystyrene spheres are 250, 300, 450, 600 and 950 nm, respectively.

The electroluminescence results show that using polystyrene sphere monolayer can improve the light-extraction efficiency compared with using the conventional LEDs, and the light-extraction efficiency reaches a maximum when the average size of spheres (450 nm) approximates to the wavelength (465 nm) of that light. The light output power of the LED with polystyrene sphere of the optimum size is experimentally enhanced by 1.34 and 1.25 times under the injection currents of 20 and 150 mA, respectively. In order to explain the physical mechanism of the light-extraction enhancement, we carried out the three-dimensional finite difference time-domain simulation thereby calculate the transmission spectrum of the structure. The results of simulation show that the incident light beyond the critical angle can be partly extracted when the surface of LED has a polystyrene sphere monolayer, leading to an enhanced light-extraction efficiency. So the nanosphere monolayer acts as a two-dimensional diffraction lattice which behaves as a light scattering medium for the light propagating in a waveguiding mode within the LED. Furthermore, the polystyrene nanosphere has the advantages of low-cost and high-precision, and is very suitable for large area preparation on LEDs. So this method is a simple and cost-effective method to improve the light-extraction efficiency from LED.

Keywords: light emitting diodes, nanospheres monolayer, electroluminescence, light extraction efficiency

PACS: 85.60.Jb, 81.16.Rf, 78.60.Fi

DOI: 10.7498/aps.64.148502

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11174061, 11404067, 61475038, 11447181) and the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. S2013010015795).

† Corresponding author. E-mail: wanwei0615@126.com