

图形硅衬底 GaN 基发光二极管薄膜去除衬底及 AlN 缓冲层后单个图形内微区发光及应力变化的研究

张超宇 熊传兵 汤英文 黄斌斌 黄基锋 王光绪 刘军林 江风益

Changes of micro zone luminescent properties and stress of GaN-based light emitting diode film grown on patterned silicon substrate, induced by the removal of the substrate and AlN buffer layer

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

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 187801 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.187801

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.187801>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I18>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于溶液加工小分子材料发光层的有机-无机复合发光器件

Phosphorescent hybrid organic-inorganic light emitting devices with solution-processed small molecule emissive layers

物理学报.2015, 64(16): 167801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.167801>

利用发光层梯度掺杂改善顶发射白光有机发光二极管光谱的稳定性

Improvement of the color-stability in top-emitting white organic light-emitting diodes by utilizing step-doping in emission layers

物理学报.2015, 64(9): 097801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097801>

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

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

物理学报.2014, 63(21): 217806 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.217806>

PCDTBT 作为发光层的有机电致发光器件研究

Organic light-emitting devices based on PCDTBT as emitting layer

物理学报.2014, 63(16): 167802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.167802>

基于纳米硅结构的氮化硅基发光器件电致发光特性研究

Electroluminescence from Si nanostructure-based silicon nitride light-emitting devices

物理学报.2014, 63(3): 037801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.037801>

图形硅衬底 GaN 基发光二极管薄膜去除衬底及 AlN 缓冲层后单个图形内微区发光及应力变化的研究*

张超宇¹⁾ 熊传兵^{1)2)†} 汤英文²⁾ 黄斌斌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 10 日收到; 2015 年 5 月 18 日收到修改稿)

研究了图形硅衬底上外延生长的氮化镓 (GaN) 基发光二极管 (LED) 薄膜、去除硅衬底后的无损自由状态 LED 薄膜以及去除氮化铝 (AlN) 缓冲层后的自由状态 LED 薄膜单个图形内的微区光致发光 (PL) 性能, 用荧光显微镜与扫描电镜观测了去除 AlN 缓冲层前后 LED 薄膜断面弯曲状况的变化. 研究表明: 1) 去除硅衬底后, 自由支撑的 LED 薄膜朝衬底方向呈柱面弯曲状态, 且相邻图形的柱面弯曲方向不一致, 当进一步去除 AlN 缓冲层后薄膜会由弯曲变为平整; 2) LED 薄膜在去除硅衬底前后同一图形内不同位置的 PL 谱具有显著差异, 而当去除 AlN 缓冲层后不同位置的 PL 谱会基本趋于一致; LED 薄膜每一位置的 PL 谱在去除硅衬底后均出现明显红移, 进一步去除 AlN 缓冲层后 PL 谱出现程度不一的微小蓝移; 3) 自由支撑的 LED 薄膜去除 AlN 缓冲层后, PL 光强随激光激发密度变化的线性关系增强, 光衰减得到改善.

关键词: 氮化镓, 发光二极管, 自由支撑, 光致发光

PACS: 78.60.Fi, 78.55.-m, 83.85.St, 85.60.Jb

DOI: 10.7498/aps.64.187801

1 引言

尽管 GaN 基发光二极管 (LED) 在照明领域获得了广泛应用, 然而现有生产工艺的改进、新技术的开发、相关物理机理的研究仍然是整个领域的热点^[1,2]. 目前, 商品化的 GaN 基 LED 按外延衬底可分为三条技术路线: 碳化硅 (SiC)、蓝宝石 (Al₂O₃) 及硅 (Si) 衬底技术路线. 蓝宝石衬底 LED 的市场份额最大, 碳化硅衬底 LED 的市场占有率居中, 硅衬底 LED 尽管市场占有率最小, 但它的市场份额正在逐渐扩大且应用越来越广泛^[3,4]. 虽然硅衬底技术路线具有一定局限性, 但

也有诸多明显优势, 因此它是当前 LED 领域的一大研究热点^[5-7]. 由于硅衬底与 GaN 之间存在巨大的热膨胀系数和晶格失配, 因此硅衬底上外延的 GaN 基 LED 薄膜会存在巨大的张应力并且极易产生裂纹^[8]. 目前硅衬底 GaN 基 LED 外延薄膜缓减张应力和防止裂纹的方法主要有两种: 其一为使用图形硅衬底, 其二为生长较厚的铝镓氮缓冲层. 这两种方法各有优缺点, 其中在图形硅衬底上外延 GaN 基 LED 薄膜, 由于可以省去厚的铝镓氮缓冲层, 有利于降低外延成本, 其产业价值相对较大^[9,10]. 尽管图形硅衬底 GaN 基 LED 已经实现批量生产并逐渐为市场所接受, 然而还有大量的科学技术问题有待解决, 诸多研究空白

* 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) 和国家科技支撑计划 (批准号: 2011BAE32B01) 资助的课题.

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

需要进行深入研究, 其中研究清楚单个图形内不同微区的发光性能及应力状态、衬底和缓冲层与量子阱层的应力交互作用及其对发光性能的影响等问题, 对于提高硅衬底 GaN 外延薄膜质量和器件性能具有重要指导意义. 由于蓝宝石衬底与 GaN 之间也存在热膨胀系数和晶格失配, 为了减少 GaN 基薄膜外延层的位错密度与应力, 人们发展了图形蓝宝石衬底的各种外延技术并取得了显著进展 [11-13].

本文将图形硅衬底上外延生长的 GaN 基 LED 薄膜通过湿法腐蚀技术依次去除硅衬底及氮化铝 (AlN) 缓冲层, 获得了无衬底的自由状态 LED 薄膜和去除了 AlN 缓冲层的自由状态 LED 薄膜, 并对单个图形薄膜内不同微区发光和应力进行了研究. 本文的研究工作不但对于硅衬底尤其是图形硅衬底的 GaN 相关研究具有重要参考价值, 而且对

于其他衬底的 GaN 外延和芯片研究也有一定参考价值.

2 实验

实验所用图形硅衬底 GaN 基 LED 外延片是在英国 Thomans Swan 6 片金属有机化学气相沉积系统上外延生长的, 阵列图形大小为 $1200\ \mu\text{m} \times 1200\ \mu\text{m}$, 外延结构和生长过程见文献 [14, 15]. 变激发密度的光致发光 (PL) 谱为室温下测试, 激发光源为 405 nm 半导体激光器, 激光经凸透镜聚焦后激发 LED 薄膜相应的微区位置, 光谱仪为卓立汉光 SBP500 单色仪, 样品放置在卓立汉光三维组合位移台上并用其微调机构调整测试点.

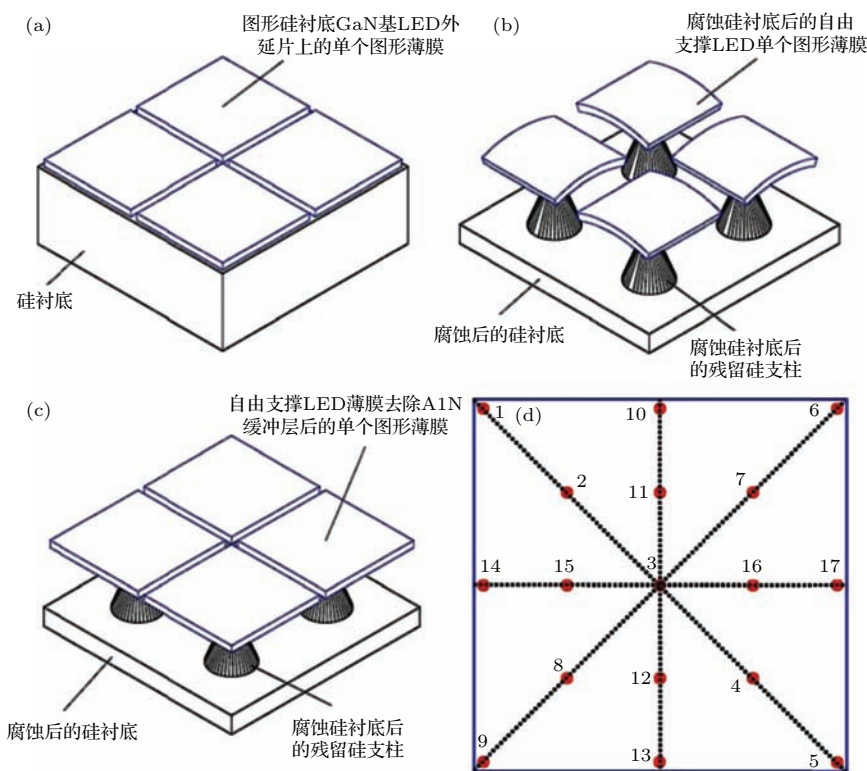


图1 (网刊彩色) 实验方案示意图 (a) 图形硅衬底 GaN 基 LED 外延片; (b) 腐蚀硅衬底后的自由支撑 LED 薄膜; (c) 去除 AlN 缓冲层后的自由支撑 LED 薄膜; (d) 单个图形薄膜上选取的 17 个 PL 测试位置点

Fig. 1. (color online) Schematic diagram of the experimental scheme: (a) Schematic diagram of GaN-based LED films grown on patterned silicon substrate; (b) schematic diagram of nondestructive free-standing LED thin film after removal of the silicon substrate; (c) schematic diagram of the free-standing LED films after removing AlN buffer layer; (d) schematic diagram of 17 PL test points selected on a single pattern film.

实验方案如图 1(a)—(d) 所示. 实验过程如下: 1) 首先在图 1(a) 所示的外延片单个图形内测试 17 个位置点的变激发密度 PL 谱, 测试点的具体位置如图 1(d) 所示, 接着用荧光显微镜和扫描电镜

(SEM) 观测了其形态; 2) 将外延片放进硅腐蚀液对硅衬底进行适当的腐蚀, 使得单个图形 GaN 基 LED 薄膜底部仅保留很小的硅支柱, 这样是为了固定自由状态 LED 薄膜, 以方便观察自由状态 LED

薄膜的形态变化, 以及保证薄膜三种状态下其PL测试的位置点能保持一致, 去除硅衬底后LED薄膜成为自由状态的示意图见图1(b); 然后再次测试同一LED薄膜图形内17个位置点的变激发密度PL谱, 并观测自由薄膜的形态; 3) 由于磷酸仅从LED薄膜底部的氮极性面腐蚀薄膜, 而不会从薄膜上部的镓极性面腐蚀薄膜, 而且磷酸在适当的温度下从氮极性面腐蚀LED薄膜时只是纵向腐蚀, 因而腐蚀后LED薄膜底面仍可保持光滑. 因此, 本文将前面做完相应测试后的样品放进120 °C磷酸中腐蚀, 以去除LED薄膜底部的AlN缓冲层, 在腐蚀过程中, 将外延片上其他不需要测试PL谱的图形取下并在扫描电镜内用EDS确认, 若AlN缓冲层被去除干净, 再次测试前面所述的同一LED薄膜图形内17个位置点的变激发密度PL谱, 测完PL谱后观测到的薄膜形态如图1(c)所示.

本文首先在同一外延片上测试了多个图形的微区光谱, 接着将外延片腐蚀硅衬底并得到自由支撑的图形LED薄膜, 然后选择微小硅支柱位置不在17个测试点的自由支撑LED薄膜测试其自由状态发光谱. 自由状态的薄膜共测试了3个图形的发

光谱, 其规律具有一致性, 选择了其中一个图形的发光数据进行报道.

3 结果与讨论

3.1 光学显微镜、扫描电镜、荧光显微镜分析

图2(a)为图形硅衬底GaN基LED外延片的光学显微镜图片, 从图中可以看出, 外延片上的LED薄膜表面平整、无裂纹. 图2(b)为外延片经过硅腐蚀液腐蚀硅衬底后的光学显微镜图片, 从图中可以看出每个图形的LED薄膜除与很小一部分硅衬底相连外, LED薄膜已经成为悬空的自由状态. 图2(c)和图2(d)分别为扫描电镜中自由状态LED薄膜的侧俯视图和侧仰视图, 从图中可以看出, 尽管在硅衬底外延片上LED薄膜图形是平整的, 但去除硅衬底成为悬空的自由支撑状态的薄膜后却变得不平整, 每个自由支撑的LED薄膜图形均朝衬底方向呈柱面弯曲, 每个图形均有两条对边呈弧状而另两条对边则保持直线且相互平行, 所有自由支撑的图形薄膜哪两条对边保持直线具有随机性.

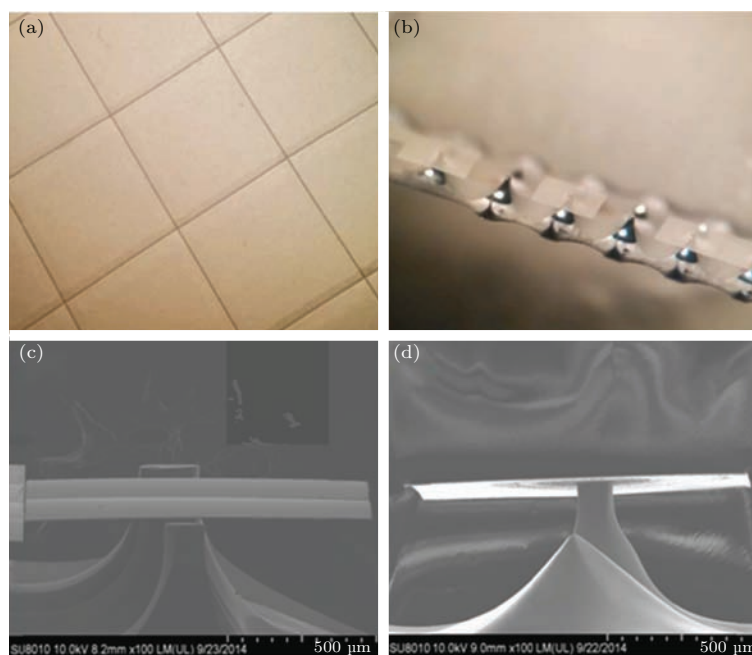


图2 光学显微镜及SEM形貌图 (a) 图形硅衬底GaN基LED外延片的光学显微镜图; (b) 去除硅衬底后的自由支撑LED图形薄膜的光学显微镜图; (c) 自由支撑LED图形薄膜的SEM侧俯视图; (d) 单个图形在去除硅衬底后的自由支撑LED图形薄膜的SEM侧仰视图

Fig. 2. Image of optical microscope and SEM: (a) Optical microscope image of GaN-based LED films grown on substrate; (b) optical microscope image of nondestructive free-standing LED thin film after removal of the silicon substrate; (c) SEM top view of nondestructive free-standing LED thin film after removal of the silicon substrate; (d) SEM upward view of nondestructive free-standing LED thin film after removal of the silicon substrate.

为了更为直观地展示自由状态LED薄膜的形态和揭示薄膜弯曲的原因, 本文对去除硅衬底后的自由支撑薄膜以及去除AlN缓冲层后的自由支撑薄膜先后用紫外荧光显微镜进行了测试图3(a)和图3(b)为两种自由状态的LED薄膜单个图形的俯视图和侧视图. 图3(a)是去除硅衬底后自由支撑薄膜的侧视图, 图中明亮的弧线是单个图形的一条弧形边, 可以看出, 当去除硅衬底后自由状态LED薄膜图形朝衬底方向发生了明显弯曲. 图3(b)是自由支撑薄膜用磷酸去除AlN缓冲层后的侧视图, 图中明亮的直线在去除AlN缓冲层前是弯曲的, 去除AlN缓冲层后基本变为直线, 薄膜状态由于AlN缓冲层的去除而发生了显著变化.

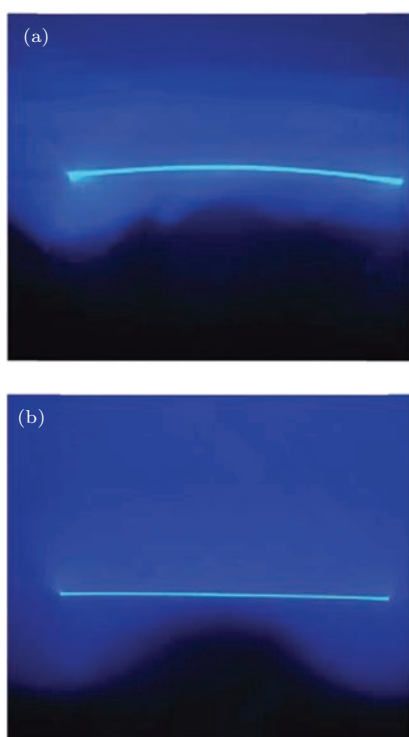


图3 (网刊彩色) 自由状态LED薄膜单个图形的荧光显微镜图 (a) 去除硅衬底后的自由状态LED薄膜单个图形朝衬底面弯曲的侧视图; (b) 自由状态LED薄膜单个图形去除AlN缓冲层后的侧视图

Fig. 3. (color online) Fluorescence microscopy of free-standing LED thin film of a single pattern: (a) Side view of the free-standing LED thin film bends to the substrate direction in a cylindrical bending state; (b) side view of the free-standing LED films after removing AlN buffer layer.

由于硅衬底与GaN之间存在巨大的热膨胀系数失配和晶格失配, 因此硅衬底上外延的GaN基LED薄膜极易产生裂纹. 人们经过了长期的探索, 发现有两条有效途径可以防止硅衬底GaN基LED薄膜产生裂纹: 其一为使用图形硅衬底并加上较

薄的AlN缓冲层, 其二为生长较厚的铝镓氮缓冲层[9,10,16]. 一般认为AlN缓冲层能对GaN外延层产生有效的压应力, 从而可起到防止硅衬底GaN基LED薄膜开裂的作用[17,18]. 本文的LED薄膜在去除硅衬底成为自由支撑LED薄膜后朝衬底面发生明显的弯曲, 去除AlN缓冲层后LED薄膜则可由明显的弯曲变为平整. 我们认为产生弯曲的原因是AlN缓冲层对LED薄膜有压应力造成的, 当去除AlN缓冲层后这种压应力也随之消失, 所以LED薄膜又变平整, 这一显著的实验现象形象直观地证明了文献[17—19]所推测的AlN缓冲层会对GaN层产生有效压应力的观点. 每个自由支撑的GaN基LED薄膜图形在去除AlN缓冲层前, 呈柱面弯曲, 两条边呈平行直线, 另两条边呈弧形, 且相邻图形的弯曲方向呈现随机性. 这可能是由于受图形衬底边界效应的影响引起了外延生长的AlN缓冲层厚度不均匀所导致, 具体原因还有待进一步研究证实.

3.2 单个图形内微区发光性能分析

图4(a)—(d)为GaN基LED薄膜同一图形不同位置17个测试点的微区PL谱在三种状态下的对比图. 图4(a)和图4(b)分别为LED薄膜单个图形对角线上5个测试点的PL谱对比, 图4(c)和图4(d)分别为图形薄膜四条边的中点连线上5个测试点的PL谱对比. 硅衬底GaN基LED薄膜外延片在不去除衬底时, 其电致发光和光致发光均会由于硅衬底反射量子阱有源层发出的光而使发光谱存在明显的干涉现象[20,21], 同时本文实验过程中发现自由支撑的LED薄膜其光致发光谱也存在微弱的干涉现象. 为了提高实验数据的可对比性, 本文在样品和单色仪之间的光路上设置了光学毛玻璃片减小光谱的干涉现象.

从图4中可以看出: 1) 在去除硅衬底前, 外延片上的LED薄膜单个图形内17个测试点的PL谱波长具有明显差异, 中心测试点3的峰值波长大于中圈的8个测试点(2, 11, 7, 16, 4, 12, 8, 15), 中圈8个测试点的峰值波长又大于外圈8个测试点(1, 10, 6, 17, 5, 13, 9, 14), 中圈各位置点的峰值波长与中心点差异不明显, 而外圈各测试点的峰值波长与中心点差异显著; 2) 去除硅衬底后, LED薄膜图形内各测试点的峰值波长均出现明显红移, 同时各测试点波长的差异较没有去除硅衬底时明显减小; 各测试点红移程度有一定的规律性, 中心测试点

的红移程度小于中圈测试点, 中圈测试点的红移程度小于外圈测试点; 3) 进一步去除 AlN 缓冲层后, LED 薄膜各个测试点均出现程度不一的微小蓝移, 蓝移程度规律不明显; 自由状态 LED 薄膜 PL 谱的峰形对称性比硅衬底上 LED 薄膜要强, 这是由于消干毛玻璃片不能彻底消除硅衬底 PL 发光的干涉现象导致的.

在去除硅衬底前, LED 薄膜同一图形内不同位置的 PL 谱差异明显; 去除硅衬底后, 其发光谱

明显红移且各点发光谱差异变得不明显; 当去除 AlN 缓冲层后, 不同位置的 PL 谱均会较去除 AlN 前出现微小蓝移且各点发光谱基本趋于一致. 本文将上述现象产生的原因归结为 LED 薄膜的应力发生了改变. 光致发光谱是用 405 nm 激光激发 LED 薄膜获得的, 405 nm 激光的光子能量小于 GaN 及 AlN, 因而该光致发光谱反映的是 InGaN 阱层的发光情况.

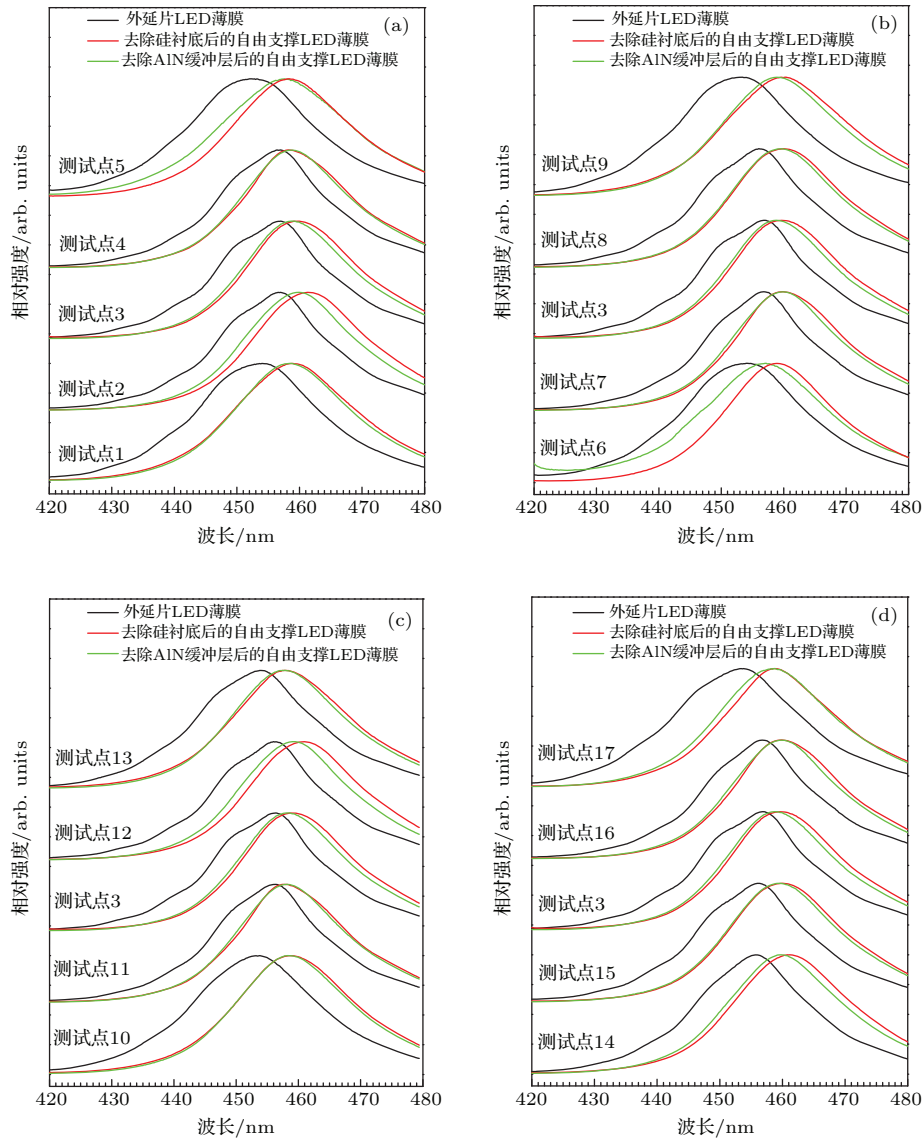


图4 (网刊彩色) 外延片上 GaN 基 LED 薄膜、去除硅衬底自由支撑 LED 薄膜和去除 AlN 缓冲层后自由支撑 LED 薄膜在 116 mW 的 405 nm 激光激发下单个图形不同位置的微区 PL 谱对比 (a) 测试点 1, 2, 3, 4, 5 的 PL 谱; (b) 测试点 6, 7, 3, 8, 9 的 PL 谱; (c) 测试点 10, 11, 3, 12, 13 的 PL 谱; (d) 测试点 14, 15, 3, 16, 17 的 PL 谱

Fig. 4. (color online) Micro zone PL spectra of GaN-based LED films on wafer, free-standing LED thin film after removal of the silicon substrate and the free-standing LED films after removing AlN buffer layer excited by 116 mW 405 nm laser at different regions in a single pattern: (a) PL spectrum of test point 1, 2, 3, 4, 5; (b) PL spectrum of test point 6, 7, 3, 8, 9; (c) PL spectrum of test point 10, 11, 3, 12, 13; (d) PL spectrum of test point 14, 15, 3, 16, 17.

在去除硅衬底前, LED 薄膜同一图形内不同位置的 PL 谱差异明显的原因可能是: 由于硅和 GaN 之间存在着巨大的热膨胀系数失配, 而 GaN 是在高温下生长的, 降温过程中单个图形的 LED 薄膜在各方向收缩的程度不一致, 导致图形薄膜内各微区的 GaN 张应力大小不同, 从而导致各微区量子阱层 InGaN 所受的压应力不同, 引起阱层的能带倾斜和禁带宽度不同, 从而各微区的发光波长不同. 同一图形内离中心点越远的位置 GaN 层受到的张应力越大, InGaN 阱层受到的压应力越小, 所以图形中心位置点的波长最长, 离图形中心越远的位置点其波长越短.

去除硅衬底后, LED 薄膜发光谱明显红移且各点发光谱差异变得不明显的原因可能是: 由于硅衬底外延片上的 GaN 基 LED 薄膜总体上受到衬底的巨大张应力, 此时 InGaN 发光阱层受到来自垒层的压应力比较小, 当外延硅衬底去除后, LED 薄膜整体受到的来自硅衬底的张应力随之被去除, LED 薄膜成为自由支撑状态, 此时 InGaN 发光阱层受到的压应力增大, 阱层能带倾斜变严重, 从而导致发光波长出现明显红移. 图形 LED 薄膜在去除硅衬底前, 离图形中心越远的位置点所受的张应力越大, 离中心越近的位置点所受的张应力越小, 当去除硅衬底后 LED 薄膜来自衬底的张应力随之被去除, 此时 LED 薄膜图形内每一位置点的应力状况相差较小; 同时由于同一个图形区域内其量子阱层的组分和厚度并不会因为位置的不同而有所不同^[22], 所以只要阱层受到的应力相差较小, 其发光谱波长就会相差较小, 这就是衬底去除后 PL 谱波长差异明显减小的原因.

当去除 AlN 缓冲层后, 不同位置的 PL 谱均会较去除 AlN 前出现微小蓝移, 且各点发光谱会基本趋于一致. 每个测试点蓝移程度有所不同, 其原因可能是: 在对图 3 中的 LED 薄膜去除 AlN 缓冲层后薄膜会由弯曲变为平整的分析可知, AlN 缓冲层对 LED 薄膜有压应力的作用. 当去除 AlN 缓冲层后, AlN 缓冲层对 LED 薄膜的压应力也随之被去除, 因此 InGaN 阱层所受的压应力也随之减小, 能带倾斜程度减弱, 因此出现发光波长蓝移, 这一结果与图 3 中的结果是相互印证的. 去除 AlN 层后, 尽管发光波长会发生蓝移, 但蓝移程度与去除硅衬底引起的发光波长红移程度相比要小得多, 这表明 AlN 缓冲层对 LED 薄膜带来的压应力要比硅衬底

对 LED 薄膜带来的张应力要小很多; 去除 AlN 缓冲层前, 各测试点的发光波长仍有较小差异, 而去除 AlN 缓冲层后各测试点的发光波长基本一致, 这可能是因为 AlN 缓冲层对 LED 薄膜的压应力不均匀所导致的. 去除 AlN 缓冲层后, LED 薄膜图形内各点的发光波长基本一致的结果, 与同一个图形区域内其量子阱层的组分和厚度并不会因为位置的不同而有所不同^[19]的结果也是相互印证的.

为了研究去除 AlN 缓冲层前后自由支撑 LED 薄膜发光性能的变化, 测试了不同位置点的光致发光随激光功率的变化. 图 5(a)–(d) 为 LED 薄膜单个图形内四个测试点的变激发密度 PL 谱的对比, 图 6(a) 和图 6(b) 为 LED 薄膜去除 AlN 前后自由支撑 LED 薄膜 PL 谱积分强度与激光激发功率的关系归一化后的对比.

从图 5 可以看出: 1) 随着激发功率的增大, LED 薄膜去除 AlN 前后无论是波长差异稍大的测试点, 还是波长差异稍小的测试点, 其发光波长均会随着激发功率的加大而蓝移, 当激发功率大于 61 mW 时波长蓝移变得不明显; 2) 每个测试点在去除 AlN 前后, 其 PL 谱波长差异随激发密度增加始终基本一致, 并没有因为激发光源功率的增大而使波长差异变大或变小. 前文已经分析了同一激发密度下 LED 薄膜在去除 AlN 缓冲层后, 其 PL 谱波长会蓝移是由于解除了 AlN 缓冲层对 LED 薄膜的压应力所导致. 一般认为 PL 谱波长随激发密度增加而发生移动, 其波长移动的程度和方向主要由带填充引起的蓝移和激发密度增加热效应增强引起的红移两者之间的竞争关系所决定^[23]. LED 薄膜在去除 AlN 缓冲后, 其 InGaN 阱层受到的压应力会减少, 能带倾斜的程度减弱, 随着激发功率的增加其带填充效应引起的波长蓝移也应该会减弱. 然而, 图 5 中去除 AlN 前后四个测试点的带填充效应均没有明显差异, 本文测试了多个图形的多个测试点, 实验规律和现象均是一致的. 导致这种现象的原因可能是因为本文研究的是微区光谱, 405 nm 的激光是经过凸透镜聚焦后再激发 LED 薄膜的, 这导致了实际激发密度较大, 从而激发功率加大热效应增强引起的红移与带填充引起的蓝移存在一定的抵消作用, 导致了两种薄膜的峰值波长差异不会增大或减小, 具体原因还有待于进一步研究证实.

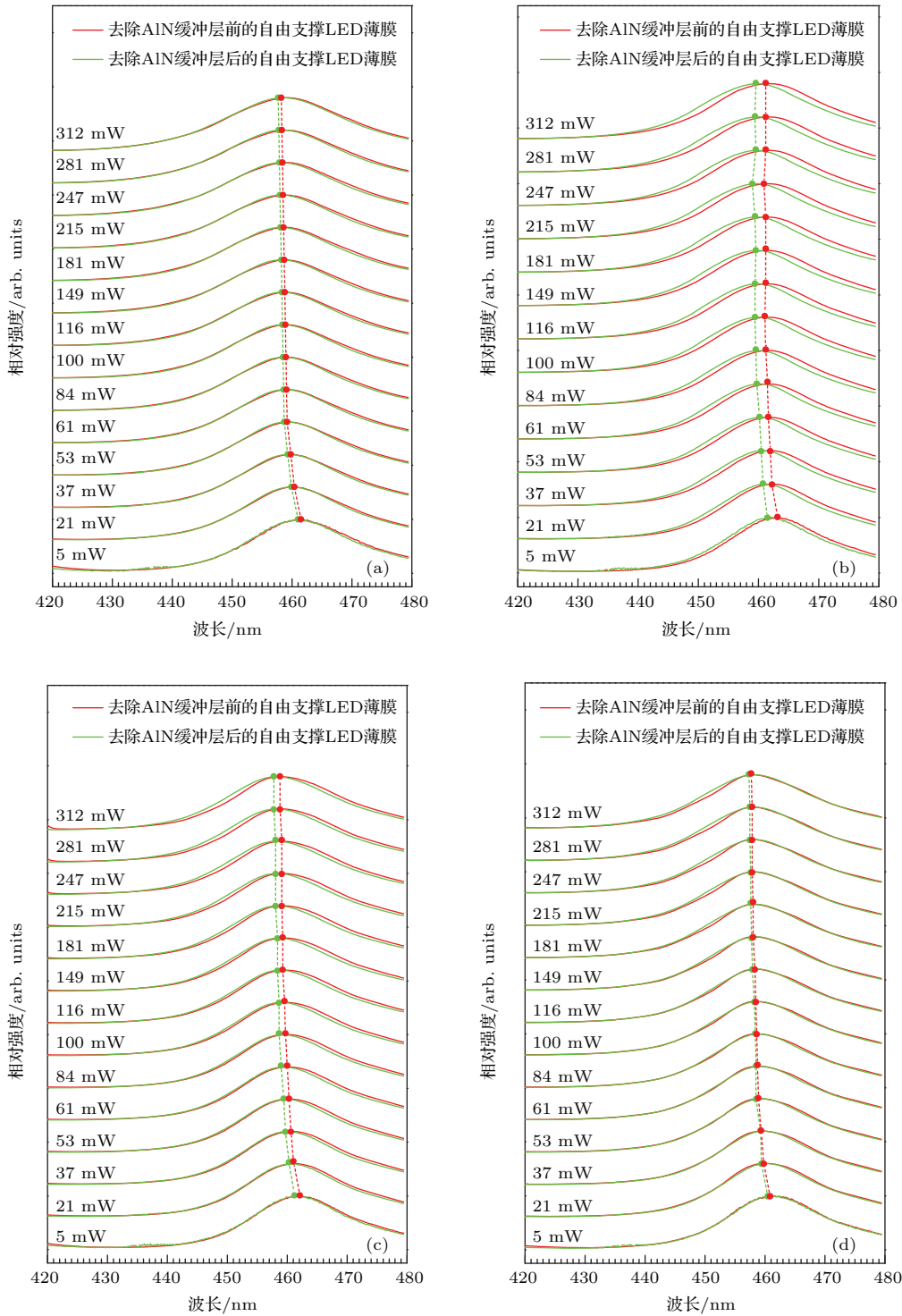


图5 (网刊彩色) 自由支撑LED薄膜去除AlN缓冲层前和去除AlN缓冲层后, 单个图形上选取的特征测试位置点的变激发功率PL光谱对比 (a) 测试位置点1; (b) 测试位置点2; (c) 测试位置点3; (d) 测试位置点4

Fig. 5. (color online) The comparison of PL spectra between the free-standing films before and after removing the AlN buffer layer under different excitation laser power of the representative point in a single pattern: (a) Comparison of position 1; (b) comparison of position 2; (c) comparison of position 3; (d) comparison of position 4.

图6(a)和图6(b)为去除AlN缓冲层前后自由支撑LED薄膜PL谱蓝移量最小的测试点1和蓝移量最大的测试点2的PL谱积分强度与激光功率的

关系归一化后的对比图. 从图中可以看出: 去除AlN缓冲层后的LED薄膜, 其PL发光的强度与激光激发功率的线性关系加强, 即LED薄膜在去除

AlN 缓冲层后其 PL 发光强度更不易饱和, 也即去除 AlN 缓冲层后的 LED 薄膜衰减 (droop) 效应得到改善; 去除 AlN 后其 PL 波长蓝移越明显的测试点, 其 droop 效应改善越明显. 我们认为这是由于: 自由支撑的 LED 薄膜在去除 AlN 缓冲层后, LED 薄膜受到的来自 AlN 缓冲层的压应力也随之被去除, 导致 InGaN 阱层受到的压应力减小, 发光阱层

的能带倾斜程度减弱, 从而电子空穴波函数交叠程度增加, 复合概率提高, 发光效率随之提高, droop 效应获得改善; 去除 AlN 缓冲层后, 蓝移程度越明显的测试位置, 其释放的压应力更大, 发光阱层受到的压应力更小, 能带倾斜程度减弱更明显, 复合概率也随之明显提高, 因此 droop 效应也相应地明显改善.

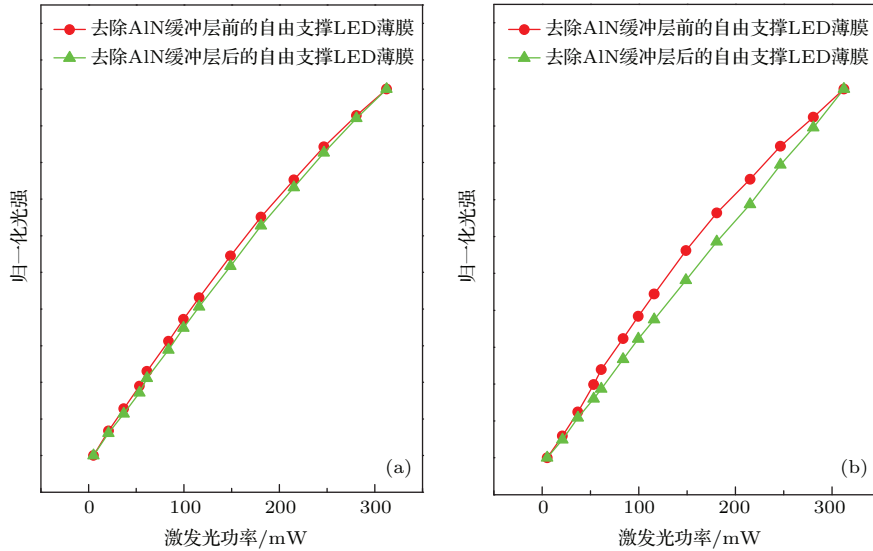


图6 (网刊彩色) 自由支撑 LED 薄膜去除 AlN 缓冲层前后 PL 谱蓝移量最小的测试点 1 和蓝移量最大的测试点 2 的 PL 谱积分强度与激光功率的关系归一化后的对比图 (a) 测试点 1; (b) 测试点 2

Fig. 6. (color online) The normalized diagram comparison of the relationship between PL intensity and excitation laser power of the free-standing films before and after removing the AlN buffer layer (point 1 has minimum blue shift and point 2 has maximum): (a) Comparison of test position 1; (b) comparison of test position 2.

4 结 论

本文将图形硅衬底上外延生长的 GaN 基 LED 薄膜依次去除硅衬底和 AlN 缓冲层并获得了相应的自由支撑 LED 薄膜, 研究了 LED 薄膜去除硅衬底及 AlN 缓冲层前后单个图形内不同微区的光致发光性能及应力的变化. 得到以下结论: LED 薄膜在去除硅衬底成为自由支撑状态时会朝衬底面发生明显的弯曲, 当去除 AlN 缓冲层后 LED 薄膜会由明显的弯曲变为平整, 这一显著的实验现象证明了 AlN 缓冲层会对 LED 薄膜产生有效的压应力; LED 薄膜在去除硅衬底前同一图形内不同位置的 PL 谱差异明显, 去除硅衬底后各微区发光谱差异变得不明显, 当去除 AlN 缓冲层后各微区发光谱基本一致, 这一现象说明了图形硅衬底 GaN 基 LED 外延片上的薄膜在单个图形内应力分布不均匀, 当去除硅衬底后张应力得到大幅度释放应力并且阱

层受到的压应力基本均匀, 当 AlN 缓冲层被去除后整个 LED 薄膜的应力和发光性能基本趋于一致. 本文的研究结果表明图形硅衬底的 LED 薄膜只有来自外界的应力被去除后各微区的发光性能才会趋于一致, 这对于开发高性能的硅衬底 LED 芯片具有重要指导意义.

参考文献

- [1] Tan B S, Yuan S, Kang X J 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 2757
- [2] Hibbard D L, Jung S P, Wang C, Ullery D, Zhao Y S, Lee H P, So W, Liu H 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 311
- [3] Kong H S, Ibbetson J, Edmond J 2014 *Phys. Status Solidi C* **11** 621
- [4] Okuno K, Oshio T, Shibata N, Honda Y, Yamaguchi M, Amano H 2014 *Phys. Status Solidi C* **11** 722
- [5] Liu J L, Feng F F, Zhou Y H, Zhang J L, Jiang F Y 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 111112
- [6] Zhu D D, McAleese C, Häberlein M, Salcianu C, Thrush T, Kappers M, Phillips A, Lane P, Kane M, Wallis D,

- Martin T, Astles M, Hylton N, Dawson P, Humphreys C 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 014502
- [7] Tripathy S, Lin V K S, Teo S L, Dadgar A, Diez A, Bläsing J, Krost A 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 231109
- [8] Wang T W, Chen N C, Lien W C, Wu M C, Shih C F 2008 *Appl. Phys. Lett.* **104** 063104
- [9] Tanaka S, Kawaguchi Y, Sawaki N, Hibino M, Hiramatsu K 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 2701
- [10] Kim M H, Bang Y C, Park N M, Choi C J, Seong T Y, Park S J 2011 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2858
- [11] Jain S C, Willander M, Narayan J, Overstraeten R V 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 965
- [12] Jiang Y, Jia H Q, Wang W X, Wang L, Chen H 2011 *Energy Environ. Sci.* **4** 2625
- [13] Jia H Q, Guo L W, Wang W X, Chen H 2009 *Adv. Mater.* **21** 4641
- [14] Mo C L, Fang W Q, Pu Y, Liu H C, Jiang F Y 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] Kadir A, Huang C C, Lee K E K, Fitzgerald E A, Chua S J 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 232113
- [17] Shen X Q, Takahashi T, Rong X, Chen G, Wang X Q, Shen B, Matsuhata H, Ide T, Shimizu M 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 231908
- [18] Turnbull D A, Li X, Gu S Q, Reuter E E, Coleman J J, Bishop S G 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 4609
- [19] Godlewski M, Bergman J P, Monemar B, Rossner U, Barski A 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 2089
- [20] Xiong C B, Jiang F Y, Wang L, Fang W Q, Mo C L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7864 (in Chinese) [熊传兵, 江风益, 王立, 方文卿, 莫春兰 2008 物理学报 **57** 7864]
- [21] Chen D Y, Wang L, Xiong C B, Zheng C D, Mo C L, Jiang F Y 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 098101
- [22] Wu X M, Liu J L, Quan Z J, Xiong C B, Zheng C D, Zhang J L, Mao Q H, Jiang F Y 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 221101
- [23] Luo Y, Guo W P, Shao J P, Hu H, Han Y J, Xue S, Wang L, Sun C Z, Hao Z B 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2720 (in Chinese) [罗毅, 郭文平, 邵嘉平, 胡卉, 韩彦军, 薛松, 汪莱, 孙长征, 郝智彪 2004 物理学报 **53** 2720]

Changes of micro zone luminescent properties and stress of GaN-based light emitting diode film grown on patterned silicon substrate, induced by the removal of the substrate and AlN buffer layer*

Zhang Chao-Yu¹⁾ Xiong Chuan-Bing^{1)2)†} Tang Ying-Wen²⁾

Huang Bin-Bin¹⁾ 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 36300, China)

(Received 10 February 2015; revised manuscript received 18 May 2015)

Abstract

At present, there are mainly two kinds of methods to prevent crack and reduce tensile stress of the silicon substrate GaN based light emitting diode (LED) epitaxial films: one is to use the patterned silicon substrate and the other is to grow a thick AlGaIn buffer layer. The two kinds of methods have their own advantages and disadvantages. Although the patterned silicon substrate GaN based LED has industrialized and is gradually accepted by the market, there remain many scientific and technical problems, to be resolved, and a lot of research gaps worth studying deeply. Among these problems, to clearly investigate the different micro zone photoluminescence and the stress states in a single-patterned GaN based LED film grown on patterned silicon substrate. The studies of the stress interaction between the buffer layer and the quantum well layer and the effect on the luminescent properties have important guiding significance for improving the quality and performance of the devices. Different micro zone photoluminescence (PL) properties in single-patterned GaN-based LED films grown on patterned silicon substrates, nondestructive free-standing LED thin film after removing away the silicon substrate, and the free-standing LED films after removing away the AlN buffer layer are studied. The variations of the bending degree of the free-standing LED thin films before and after removing away AlN buffer layer are investigated by using fluorescence microscopy and scanning electron microscopy. The results show as follows. 1) After removing away the silicon substrate, the free-standing LED film bends to the substrate direction in a cylindrical bending state. After removing away the AlN buffer layer, the LED film bends into flat. 2) For LED thin films on silicon substrates or off silicon substrates, their PL spectra have significant differences in different micro zones for the same pattern. When the AlN buffer layer is removed from the substrate its PL spectrum tends to be consistent in the different micro zones of the same pattern. When the patterned silicon substrate GaN-based LED thin film is removed from the silicon substrate, the PL spectrum is redshifted in each micro zone. After AlN buffer layer is removed from the substrate, the PL spectra present different degrees of blueshift in each micro zone. 3) The LED films before and after removing away the AlN buffer layer show some differences in droop effect.

Keywords: GaN, light emitting diode, free-standing, photoluminescence

PACS: 78.60.Fi, 78.55.-m, 83.85.St, 85.60.Jb

DOI: 10.7498/aps.64.187801

* 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 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