

文章编号: 1000-7032(2024)04-0603-10

蓝宝石/石墨烯衬底上蓝光LED外延生长及光电性能

林易展¹, 熊飞兵^{1*}, 李森林², 董雪振², 高默然², 丘金金², 周凯旋³, 李明明¹

(1. 厦门理工学院, 福建 厦门 361024;

2. 厦门士兰明镓化合物半导体有限公司, 福建 厦门 361026; 3. 北京石墨烯研究所, 北京 100095)

摘要: 对在蓝宝石/石墨烯衬底上生长LED(Light-emitting diodes)外延的方法及其对光电性能的改善进行了探究。研究表明,蓝宝石/石墨烯衬底具有更低的位错密度,螺位错和刃位错比传统样品分别减少了15.3%和70.8%。拉曼测试也表明蓝宝石/石墨烯样品受到的压应力小于传统样品。元素分析结果表明,有源区量子阱生长情况较好,In和Ga元素均匀地分布在量子阱中,未发生相互扩散的情况。光电性能测试结果表明,无论是在工作电流还是饱和电流下,蓝宝石/石墨烯样品的LOP(Light output power)都大于传统样品,工作电流和饱和电流下LOP分别增加了18.4%和36.7%,并且效率下降较传统样品有所改善,相较于传统样品效率下降减少了9.9%。从变温测试结果可以得到,蓝宝石/石墨烯样品也表现出较低的热阻、结温和较小的波长偏移,其平均热阻比传统样品低了5.14 °C/W。结果表明,在蓝宝石/石墨烯衬底上外延生长的样品对器件的光电性能和散热性能等都有较大的提升。

关键词: 蓝宝石/石墨烯; 晶体质量; 效率下降; 散热性能

中图分类号: TN312.8

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20230330

Improvement of Blue Light LED Epitaxy Grown on Sapphire/Graphene Substrate

LIN Yizhan¹, XIONG Feibing^{1*}, LI Senlin², DONG Xuezheng²,

GAO Moran², QIU Jinjin², ZHOU Kaixuan³, LI Mingming¹

(1. Xiamen University of Technology, Xiamen 361024, China;

2. Xiamen Silan Advanced Compound Semiconductor Co., Ltd., Xiamen 361026, China;

3. Beijing Graphene Institute, Beijing 100095, China)

* Corresponding Author, E-mail: fbxiang@xmut.edu.cn

Abstract: In this article, we investigate the method of growing LED(Light emitting diodes) epitaxy on sapphire/graphene substrates and its impact on improving optoelectronic performance. The research results indicate that sapphire/graphene samples have a smaller FWHM(Full width half maximum) compared to traditional sapphire samples, indicating that sapphire/graphene substrates have a lower dislocation density. And in Raman testing, it was shown that the sapphire/graphene sample was subjected to less compressive stress than traditional samples. In the elemental analysis, it was shown that the growth of the active region quantum well was good, and In and Ga elements were uniformly distributed in the quantum well without any mutual diffusion. The photoelectric performance test of the sample shows that the LOP(Light output power) of the sapphire/graphene sample is higher than that of the traditional sample, both at working current and saturation current, and the efficiency is improved compared to the traditional sample. In the variable temperature test, sapphire/graphene samples also showed lower thermal resistance, lower junction temperature, and smaller wavelength shift. In summary, samples grown by epitaxial growth on sapphire/graphene substrates have significantly improved the optoelectronic and heat dissipation performance of the device.

收稿日期: 2023-12-23; 修订日期: 2024-01-12

基金项目: 福建省自然科学基金(2020J01297)

Supported by The Natural Science Foundation of Fujian Province(2020J01297)

Key words: sapphire/grapheme; crystal quality; efficiency drop; thermal characteristics

1 引 言

氮化镓(GaN)基半导体材料因其特殊的物理性能和化学性能在固态照明、平板显示器、太阳能和电力电子等应用方面获得了广泛的关注^[1-4]。通常 GaN 薄膜生长在蓝宝石(Al_2O_3)基板上,但是, Al_2O_3 与 GaN 薄膜之间存在较大的晶格失配和热失配会导致缺陷及应力的产生^[5-8],极大地降低了 LED(Light-emitting diodes)的性能^[9-12]。为了减少以上问题,可以在 Al_2O_3 衬底和 GaN 薄膜之间引入石墨烯(Graphene, Gr)。石墨烯是由 C 原子构成的六边形蜂窝状层状结构。在范德华外延中,由于二维材料和衬底之间以及二维材料和外延层之间大部分都会通过范德华力结合在一起,所以外延层和衬底之间不受晶格常数失配的影响。因此,基于范德华外延生长的薄膜在理论上应处于无应力的状态,有利于提升外延薄膜的质量。所以,与传统的缓冲层相比,石墨烯薄膜用作缓冲层具有消除失配、减少应变等优势^[13-17]。此外,石墨烯薄膜也具有优异的热传导性能,根据已有研究报告,单层石墨烯的室温热导率值高达 $5\,300\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ^[18-20]。LED 芯片的散热与 LED 芯片的结构设计紧密相关,正装 LED 芯片主要通过衬底端进行散热。LED 器件的老化失效大概率与高温导致界面结构的破坏和退化有关,因此,散热对于器件的性能和寿命有重要影响^[21-25]。石墨烯薄膜因其优异的热特性也被认为是一种潜在的散热层,理论上可以克服在大电流下运行时的自加热问题。并且,石墨烯薄膜可以作为 III-V 半导体外延生长的剥离层,有望应用于可转移和柔性 LED 领域^[26]。但是,在蓝宝石上直接沉积石墨烯薄膜并在其上外延生长出高质量 GaN 外延薄膜的报道较少。其主要原因是石墨烯薄膜表面的迁移势垒较低^[27-28],并且成核量较少,限制了氮化镓薄膜的横向合并导致表面变得粗糙。本实验对石墨烯薄膜进行了一段时间的氮气(N_2)等离子体处理,用以增加成核位点,在 4 寸蓝宝石/石墨烯衬底上成功生长出高质量且完全镜面的外延并实现点亮。通过与传统样品对比,探究其光电性能与散热性能的具体表现,以期对 LED 产品的亮度提升和散热性能的改善有所帮助。

2 实 验

首先,在化学气相沉积(Cheical vapor deposition, CVD)过程中,我们将 4 英寸的商业 c 面蓝宝石晶圆先用去离子水、乙醇和丙酮进行清洗,接着放入一个三区高温管式炉中进行生长。管式炉加热至 $1\,050\sim 1\,100\text{ }^\circ\text{C}$,并在流动速率为 $800\text{ mL}/\text{min}$ 的氩气(Ar)和 $500\text{ mL}/\text{min}$ 的氢气(H_2)环境中稳定运行大约 10 min。随后,向腔体中引入 $30\sim 40\text{ mL}/\text{min}$ 的甲烷(CH_4)作为碳源,以促进石墨烯在蓝宝石衬底上的生长,这个过程大约持续 3~5 h,生长 5~6 层的石墨烯,厚度约为 1.5 nm。之后将样品取出,放入等离子体清洗机中进行氮等离子体后处理。该处理过程中氮气 plasma 处理功率为 200 W,氮气流量 $40\sim 45\text{ mL}/\text{min}$,处理时间为 1~3 min。其次,选用中微的 A7 型号金属有机化学气相沉积(Metal organic chemical vapor deposition, MOCVD)机台作为本实验外延生长的机台,所用的结构如图 1(a)所示。图 1(a)中样品 A、B 和 C 是以蓝宝石/石墨烯作为衬底,传统结构样品则是以 4 英寸蓝宝石为衬底。样品 A 在 $550\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $1.1\times 10^5\text{ Pa}$ (800 torr)的条件下通入约 $300\text{ mL}/\text{min}$ 的三甲基镓(TMGa)生长 GaN 缓冲层。样品 B 在 $550\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $1.1\times 10^5\text{ Pa}$ (800 torr)的条件下通入约 $100\text{ mL}/\text{min}$ 三甲基铝(TMAI)和 $150\text{ mL}/\text{min}$ 的 TMGa 生长氮化镓铝(AlGaIn)缓冲层。样品 C 则是在蓝宝石/石墨烯衬底结构上沉积了一层氮化铝(AlN)薄膜作为缓冲层。传统结构样品是正常在蓝宝石衬底上沉积 AlN 然后进行外延生长。四种样品都是在 MOCVD 中进行后续的外延生长,外延生长的条件保持相同。在缓冲层上生长低温 GaN 层,非故意掺杂的 GaN 层两层总厚度约为 $4\text{ }\mu\text{m}$ 。之后,生长 20 nm 厚的 AlGaIn 位错阻挡层,用来阻挡下方的位错向上延伸。在位错阻挡层上生长 2 μm 厚 Si 掺杂的 n-GaN 层作为导电层。然后,生长 6 对 $\text{In}_{0.06}\text{Ga}_{0.94}\text{N}/\text{Al}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ (2 nm/8 nm)的超晶格应力缓冲层、11 对 $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{N}/\text{Al}_{0.02}\text{Ga}_{0.98}\text{N}$ (4 nm/9 nm)多量子阱层作为发光层和 15 对 GaN/AlGaIn(2 nm/2 nm)组成的超晶格电子阻挡层,最后生长 40 nm 厚 Mg 掺杂的 p-GaN 层。

外生长完成后在外延上制作 LED 器件, 如图 1(a) 所示。图 1(a) 为 LED 外延及器件结构示意图, 图 1(b) 为 LED 芯片的实物俯视图。由于正

装 LED 器件具有制程简单、性能稳定等优点, 所以本文中的实验皆是使用正装 LED 结构, 芯片尺寸为 9 mil×28 mil, 其出光面为器件正面。

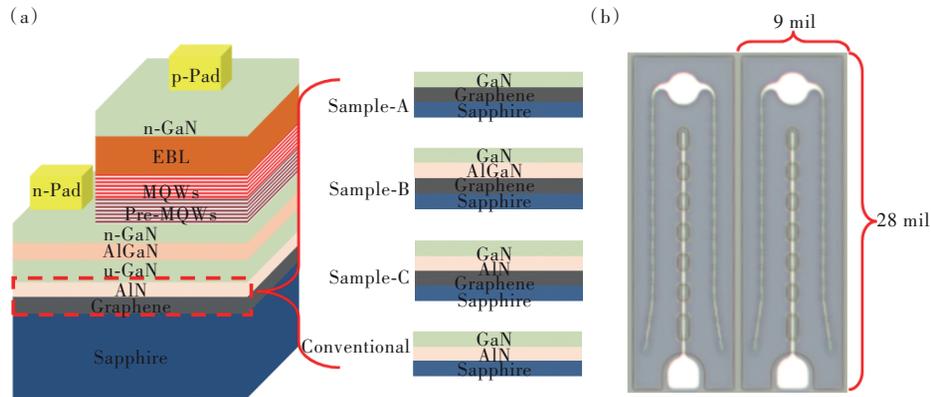


图 1 结构示意图。(a)LED 外延及器件结构示意图;(b)LED 器件俯视图

Fig.1 Structural diagram. (a)Schematic diagram of LED epitaxial and device structure. (b)Top view of LED devices

本文使用 Park XE15 原子力显微镜 (Atomic force microscope, AFM) 设备对外生长前后薄膜的表面形貌进行表征, 使用 Bruker JV-DX 2121 高分辨率 X 射线衍射 (High resolution X-ray diffraction, HRXRD) 设备表征外延片生长后的晶体质量, 使用北京中拓光致发光 (Photoluminescence, PL) 光谱仪 IM-3000 设备测试外延片的波长和光致发光强度等, 并在器件制作完成后使用矽电 L-10MC-SM 光电测试系统对其室温下的电学性能

和光学性能进行测试。

3 结果与讨论

四种样品外生长完成后的外观如图 2 所示。从图 2(a1)、(a2) 中可知, 样品 A 晶圆片的外观为粗糙面, 并且在显微镜下呈现不规则晶体的形态。该现象应归因于 Ga 原子在石墨烯薄膜下的吸附能较低, 虽然有 N₂ 等离子处理的悬挂键, 但是依旧无法正常生长。样品 B 通入少量的 Al

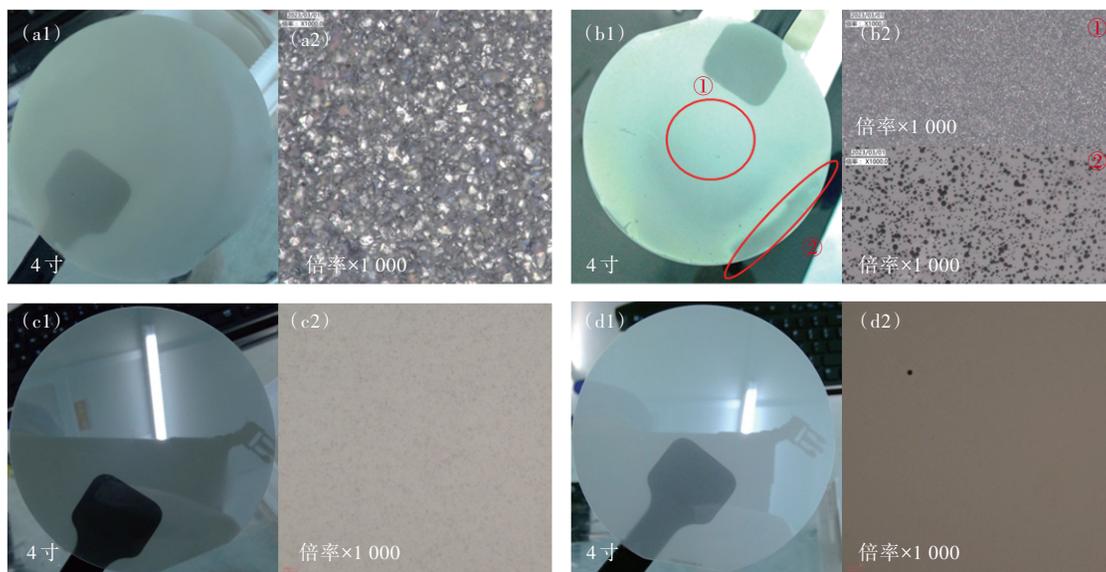


图 2 四种样品在宏观下的外观及其在显微镜下的外观形貌。(a1)~(a2)样品 A 的外观形貌;(b1)~(b2)样品 B 的外观形貌;(c1)~(c2)样品 C 的外观形貌;(d1)~(d2)传统样品的外观形貌

Fig.2 Appearance of the four samples under macroscopy and their appearance under the microscope. (a1)~(a2)Appearance of sample A. (b1)~(b2)Appearance of sample B. (c1)~(c2)Appearance of sample C. (d1)~(d2)Appearance of conventional sample

元素使 buffer 层由 GaN 改为 AlGaIn。在图 2(b1)、(b2)中,晶圆片的中间和边缘显示了不同的生长状况。样品 B 中间位置呈现的状况依旧与样品 A 的相同,为粗糙面,但是,在边缘的些许位置已经有较为粗糙的镜面出现。在显微镜下可以看到中间位置和样品 A 情况较为类似,边缘位置已经有较平整的面出现只是还未完全合并。该现象归因于 Al 原子较 Ga 原子有更高的吸附能,在部分位置形成位点开始生长。图 2(c1)、(c2)为样品 C 的晶圆外观,样品 C 的 buffer 层为沉积了较薄的 AlN 结构。从图中可以明显地看出,整片晶圆已经呈现出光滑的镜面表面,在显微镜下呈现出已合并的较为平整的表面。因存在石墨烯薄膜,所以样品 C 与传统样品(图 2(d1))相比表面呈现出较暗的颜色。

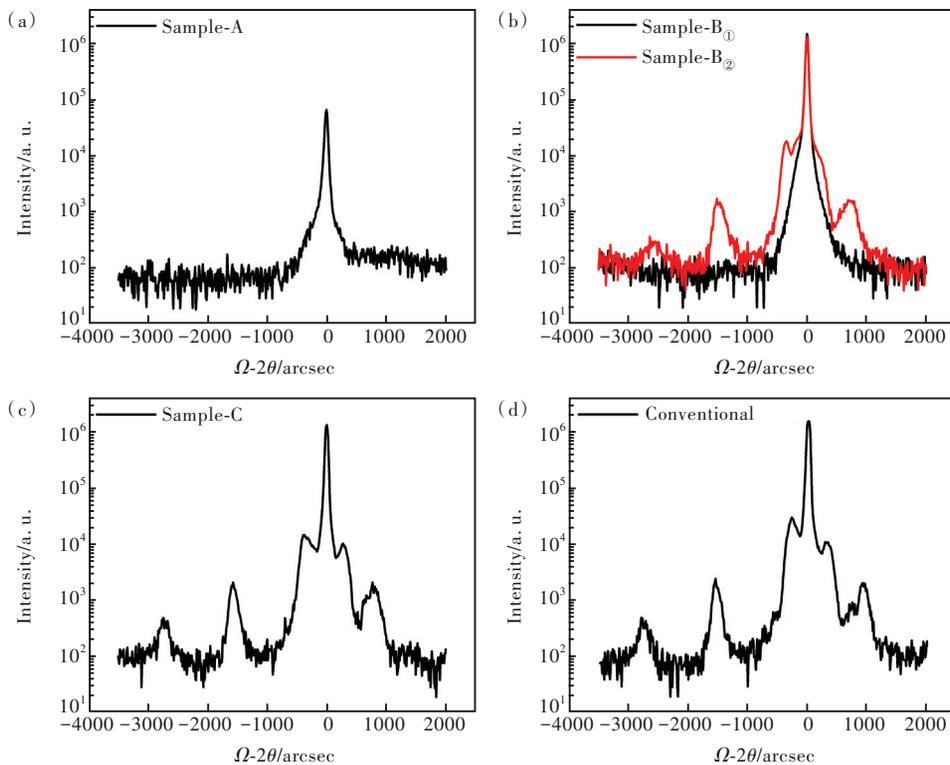


图 3 四种样品的 HRXRD 测试图。(a)样品 A 的 XRD;(b)样品 B 的 XRD;(c)样品 C 的 XRD;(d)传统样品的 XRD

Fig.3 HRXRD test diagram for four samples. (a)XRD of sample A. (b)XRD of sample B. (c)XRD of sample C. (d)XRD of the conventional sample

图 4 为样品 C 和传统样品 GaN 材料 XRD 测试的(002)和(102)面摇摆曲线。从图中可以看出样品 C 和传统样品(002)的 FWHM 分别为 188 arcsec 和 204 arcsec,两种样品的(102)面 FWHM 分别为 258 arcsec 和 382 arcsec。样品 C 的(002)和(102)面的半高宽数值都小于传统样品,由此可知,样品 C 的晶体质量要好于传统样品。这主要归因于样品 C 的石墨烯薄膜降低了外延中缺陷的产生,在

对生长完外延的四种实验片进行 HRXRD 测试,结果如图 3 所示。图 3(a)只显示了一个 GaN 的主峰,其余峰位并未出现,表明样品 A 应为三维岛状生长,因此在样品 A 上并未实现界面平整的 InGaIn/GaN 多量子阱有源层的外延生长。从图 3(b)中可以看出,样品 B 的中间在 XRD 测试中也只有一个 GaN 主峰,但是,在边缘的 XRD 测试中已经出现了除主峰外的其他峰位。该测试结果与之前显微镜下观察到的情况相符,说明边缘已经外延生长出界面较为平整的 InGaIn/GaN 多量子阱有源层。图 3(c)、(d)为样品 C 和传统样品的 XRD 测试结果,图中两种样品的各个峰位都有出现,表明样品 C 和传统样品上生长的 InGaIn/GaN 多量子阱有源层具有较好的质量。

石墨烯薄膜上生长氮化物薄膜属于准范德华外延,所生长的氮化物薄膜与蓝宝石衬底之间不再形成强化学键,石墨烯薄膜与外延层之间的作用力降低了 2~3 个数量级,减弱了衬底和外延层之间的晶格失配和热失配,降低了外延层的应力,便于获得高质量半导体薄膜。

外延的螺位错和边缘位错的密度可以由以下两个公式求得^[8]:

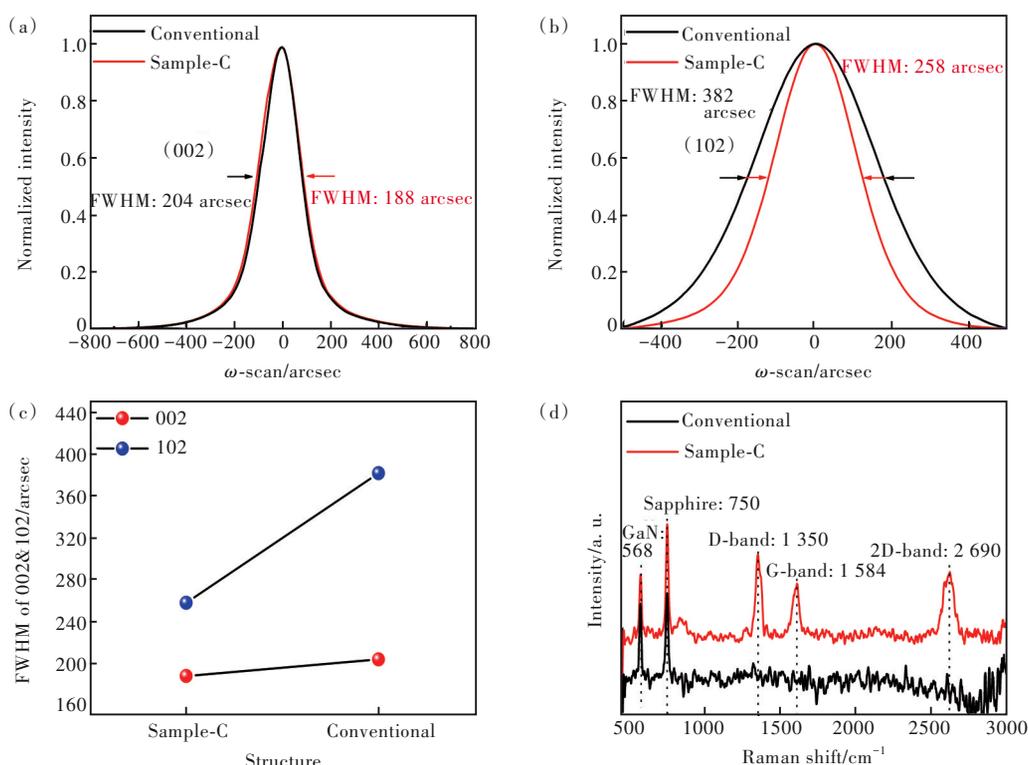


图 4 样品 C 和传统样品的 HRXRD 摇摆曲线。(a)(002) 面的摇摆曲线; (b)(102) 面的摇摆曲线; (c)(002) 和 (102) 面的半高宽值; (d) 两组样品的拉曼测试光谱

Fig.4 HRXRD patterns of sample-C and conventional samples. (a)Rocking curve of (002) plane. (b)Rocking curve of (102) plane. (c)Full width at half maximum (FWHM) values of (002) and (102) planes. (d)Raman spectra of the two sample groups

$$D_s = \frac{\beta_s^2}{4.35 \times |b_s|^2}, \quad (1)$$

$$D_e = \frac{\beta_e^2}{4.35 \times |b_e|^2}, \quad (2)$$

其中, $|b_s|$ 和 $|b_e|$ 分别表示螺位错和刃位错的伯格矢量。两种样品的位错密度计算结果如表 1 所示。由计算结果可知, 样品 C 螺位错比传统样品减小了 15.3%, 刃位错比传统样品减小了 70.8%。图 4(d) 为两组样品的拉曼测试光谱, GaN 的 E_2 (high) 典型值为 568 cm^{-1} , 大于该数值表明 GaN 受到的压应力越大。在测试结果中, 样品 C 和传统样品的 E_2 (high) 峰位分别位于 568.71 cm^{-1} 和 569.67 cm^{-1} , 可知传统样品受到了更大的压应力。图 4(d) 中由于样品 C 经过 N_2 等离子体处理, 所以呈现出 D 峰高于 G 和 2D 峰的情况, 该现象与 Chen 等^[2]报道的一致。

图 5 为外延生长前后表面粗糙度图片, 探针扫描面积为 $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ 。图 5(a)~(b) 为外延生长前的 AFM 图, 测试结果显示, 样品 C 和传统样品的表面粗糙度均方根数值分别为 0.583 nm 和

表 1 样品 C 和传统样品的位错密度计算结果

Tab.1 Results of dislocation density calculations for sample C and traditional samples

样品	FWHM/arcsec		位错密度/ (10^8 cm^{-2})	
	(002)	(102)	螺位错	刃位错
Sample-C	188	258	0.72	1.67
Conventional	204	382	0.85	5.72

0.128 nm 。由此可以看出样品 C 的表面粗糙度大于传统样品, 该结果也表明样品 C 比传统样品具有更多不规则的成核位点。图 5(c)~(d) 为外延生长后的 AFM 图, 结果显示样品 C 和传统样品在生长外延后的表面粗糙度均方根分别为 0.646 nm 和 1.377 nm 。样品 C 在生长外延后的表面粗糙度优于传统样品, 该现象可能归因于 AlN 沉积在石墨烯薄膜上时出现了更多的形核位点与晶体质量的改善^[2]。

图 6(a) 所示为外延结构在透射电子显微镜 (Transmission electron microscope, TEM) 下的剖面图, 从图中可以较为清楚地看出量子阱的分布情

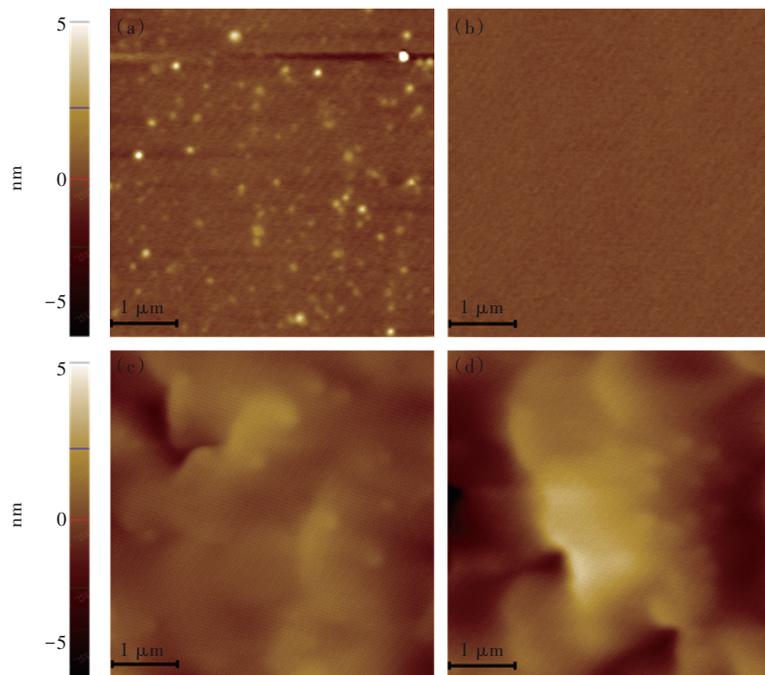


图5 外延生长前后表面粗糙度状况。(a)外延生长前样品C表面粗糙度测试图;(b)外延生长前传统样品表面粗糙度测试图;(c)外延生长后样品C表面粗糙度测试图;(d)外延生长后传统样品表面粗糙度测试图

Fig.5 Surface roughness condition before and after epitaxial growth. (a)Surface roughness test diagram of sample C before epitaxial growth. (b)Surface roughness test diagram of traditional sample before epitaxial growth. (c)Surface roughness test diagram of sample C after epitaxial growth. (d)Surface roughness test diagram of traditional sample after epitaxial growth

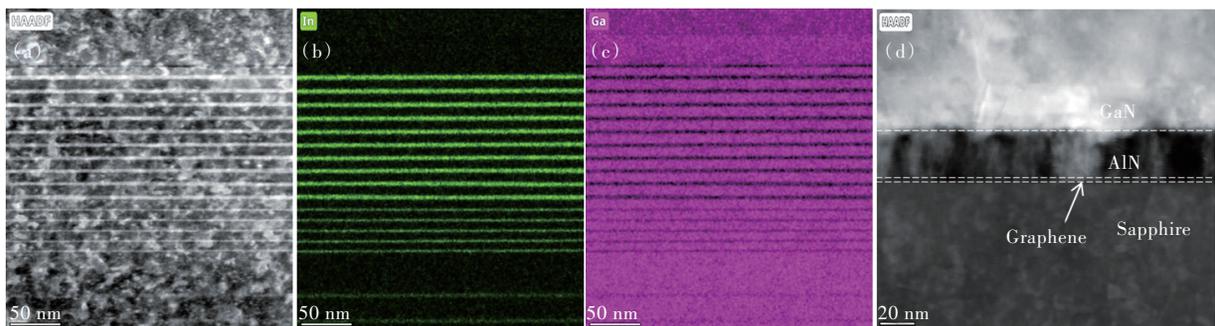


图6 外延结构TEM图。(a)量子阱位置TEM剖面图;(b)~(c)In和Ga的EDS元素分析图;(d)衬底位置TEM剖面图

Fig.6 TEM images of the epitaxial structure. (a)A cross-sectional TEM image at the quantum well position. (b)~(c)EDS(Energy-dispersive X-ray spectroscopy) element analysis maps for In and Ga. (d)A TEM cross-sectional image at the substrate position

况。图6(b)~(c)为同位置的EDS(Energy dispersive spectrometer)元素分析图,In和Ga元素都均匀地分布在量子阱中,InGaN量子阱界面平整度较好,并未发生相互扩散的情况,因此可以表明样品的量子阱生长情况较好。

本实验使用砷电L-10MC-SM光电测试系统对LED室温下的电学性能和光学性能进行测试。图7(a)为样品C和传统样品的*I-V*曲线,可以明显看出样品C相较于传统样品具有更低的电压。如图7(b)所示,在120 mA工作电流下,样品C和传统样

品LOP分别为146.9 mW和124.1 mW,样品C的LOP较传统样品增加了18.4%。在285 mA的饱和和电流下LOP分别为219.9 mW和163.3 mW,LOP增加了36.7%。样品C中LOP的增加可归因于晶体质量的改善和应力的减小。晶体质量和应力的改善使外延中的缺陷和极化效应减少,因此多量子阱(Multi-quantum well, MQWs)发光区的非辐射复合减少,辐射复合增加。图7(c)为样品工作实物图。图7(d)显示了两种LED样品的电光转换效率(Wall-plug efficiency, WPE)曲线,可以看出样品C

和传统样品的WPE峰值分别为54.1%和51.1%。在120 mA工作电流下,样品C和传统样品的WPE值分别为38.6%和31.4%,样品C和传统样品的效率下降分别为28.7%和38.6%。其原因应为样品C应力的减少使得量子阱的极化效应减小,在小电流时亮度增加,在大电流时的缺陷较少所产生的非

辐射复合降低,所以亮度下降的幅度会小于传统样品。电致发光(Electroluminescent, EL)测试光谱如图7(e)所示,在120 mA测试电流下,样品C的EL强度大于传统样品。图7(f)为样品C的EL强度分布图,除了边缘失效外,其数值集中在50~60之间,面内均匀性较好,标准差约为2.7。

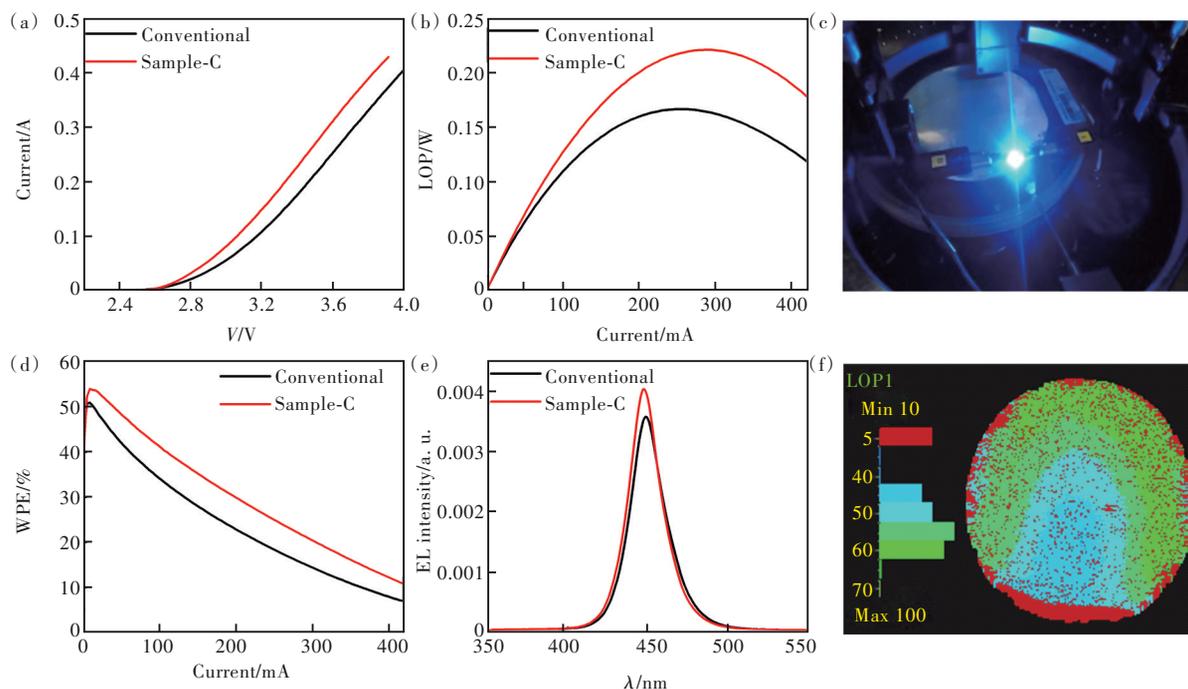


图7 LED器件电性测试图。(a) I - V 曲线测试图;(b)LOP曲线测试图;(c)LED发光实物图;(d)WPE曲线测试图;(e)EL光谱;(f)EL强度分布图

Fig.7 Electrical characterization of LED device. (a)Current-voltage(I - V) characteristics of the LED. (b)LOP function of injection current. (c)LED luminous physical image. (d)WPE function of injection current density. (e)Electroluminescence spectra of the LED as a function of the injection current. (f)EL intensity distribution map

本实验测试了样品C和传统样品在室温下(25 °C)到85 °C下光输出功率随温度变化曲线,如图8所示,我们对两种样品分别选了2颗芯粒进行测试。传统样品在室温下的光输出功率平均为124.72 mW,在85 °C下光输出功率平均为87.82 mW,光输出功率维持率平均为70.4%。样品C在室温下的光输出功率平均为142.15 mW,在85 °C下的光输出功率平均为115 mW,其光输出功率维持率平均为80.9%。结果表明,样品C的光输出功率维持率比传统样品高10.5%。该结果可以归因于样品C的石墨烯衬底具有较好的散热特性。与样品C相比,在传统样品中由于散热较差,环境温度的上升会使芯片内具有更高的温度,可能会导致各种缺陷的产生和对界面的老化及破坏,因此使传统样品的光输出功率下降得更多^[29]。

为了探究样品C的散热特性,对两种样品的

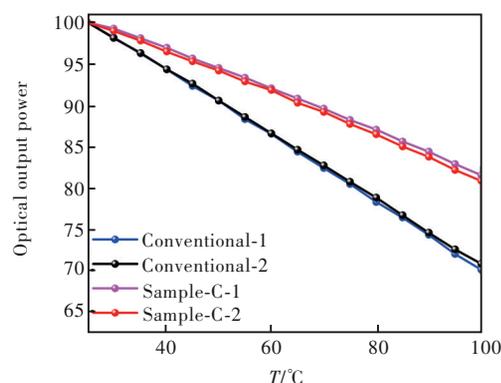


图8 LED器件光输出功率随温度变化曲线

Fig.8 The optical output power of the LED device changes with the temperature

热阻进行测试。根据公式(3)^[30]可计算出样品的结温和热阻:

$$T_J = T_A + \theta_{JA} \times P_{DISS}, \quad (3)$$

T_J 为器件PN结的结温, T_A 为周围环境温度, θ_{JA} 为

热阻, P_{DISS} 为器件总功耗。由图 9 的测试结果中可以明显看出, 传统样品和样品 C 的平均热阻分别为 $62.92\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 和 $57.78\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 。

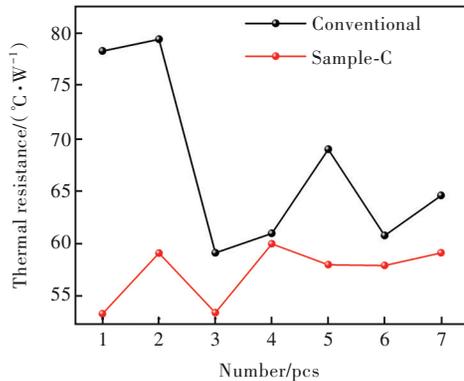


图 9 LED 器件热阻测试结果

Fig.9 Thermal resistance test results of LED devices

众所周知, 蓝宝石的导热性能较差(热导率约为 $25\text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$), 会导致器件发光效率降低并加速老化使寿命缩短, 严重制约了 LED 器件的应用。正装 LED 芯片的散热通常以发光层到衬底的热传导为主要的热传输路径, 在衬底插入石墨烯层应有助于底部散热。从图 9 的结果可知, 样品 C 比传统样品的平均热阻低了 $5.14\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{W}$, 这应是由石墨烯薄膜的高热导率和上文提及的高电光转换效率两者共同导致的。

对两种样品升温下的主波长进行测试, 测试结果如图 10 所示。从图 10 中可以发现样品 C 在变温下主波长的偏移幅度小于传统样品, 表明其色漂的程度比传统样品稳定。由于色漂的程度与温度相关联, 散热不均匀就会形成不同程度的色漂。由此也可知, 样品 C 的散热效果要优于传统样品, 该结论也与上述结果一致。

LED 器件老化 168 h 的性能如图 11 所示,

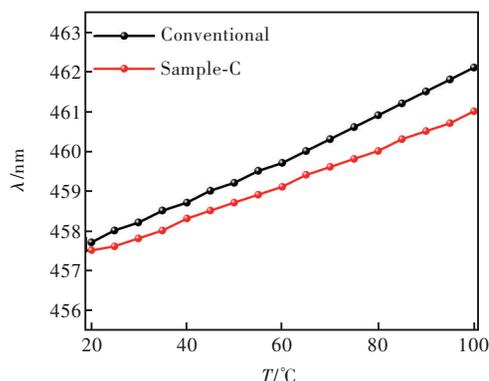


图 10 LED 器件波长偏移幅度

Fig.10 Wavelength offset amplitude of LED device

LED 器件老化所选的芯片均在 0 h 时漏电小于 $0.01\text{ }\mu\text{A}$, 两种样品各选 10 颗进行封装测试其老化性能。图 11 为 180 mA 和 200 mA 输入电流下的芯片老化情况。从图中可以看出, 4 组实验在 0~96 h 内均出现平均光输出功率上升的现象, 这可能是由于 LED 的温度升高, P 侧掺杂的 Mg 进一步活化, 载流子增加, 从而出现光输出功率上升。180 mA 输入电流条件下两种样品在 168 h 时的平均光输出功率变化在 $\pm 0.5\%$ 以内。当电流增加到 200 mA 时, 样品 C 的平均光输出功率变化仍然在 $\pm 0.5\%$ 以内, 但是传统样品的光输出功率减少了 1.2%, 这应是由高温时芯片内部缺陷的产生导致的。

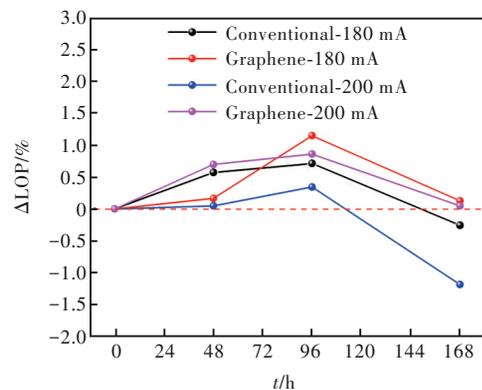


图 11 LED 器件老化 168 h 光输出性能

Fig.11 Optical output performance of LED device aging for 168 h

4 结 论

本文对在蓝宝石/石墨烯衬底上生长 LED 外延的方法进行了探究, 成功地在石墨烯薄膜上生长出完全镜面的外延并制作成 LED 器件。在各项表征如 AFM、HRXRD 和 PL 中, 均表明样品 C 具有比传统样品更好的晶体质量等。在后续的光电性能测试和变温测试中, 样品 C 也表现出更好的发光强度和更小的效率下降现象, 工作电流和饱和电流下的 LOP 分别增加了 18.4% 和 36.7%, 相较于传统样品效率下降减少了 9.9%。样品 C 也表现出较低的热阻, 其平均热阻比传统样品低了 $5.14\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{W}$ 。在升温时的波长偏移也比传统样品小, 表明其具有较好的散热特性。本研究成功的在 4 英寸晶圆的蓝宝石/石墨烯衬底上生长出高质量且完全镜面的外延并实现点亮, 希望对 LED 产品的亮度提升和散热性能方面的发展能有所帮助。最后, 由于石墨烯衬底的导电、导热及降低外延层和衬底

之间作用力等,石墨烯衬底还有望应用于垂直大功率器件中,作为其导热层和剥离转移层或者将石墨烯制作在P侧,以其优异的导电性能作为导电层,增加电流的扩散。蓝宝石/石墨烯衬底作为一种新型衬底可能还有更多的优点与应用值得学者

们去挖掘研究,为推动LED产业升级奠定基础。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:
<http://cjl.lightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20230330>.

参 考 文 献:

- [1] JIA Y Q, NING J, ZHANG J C, *et al.* High-quality transferred GaN-based light-emitting diodes through oxygen-assisted plasma patterning of graphene [J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2021, 13(27): 32442-32449.
- [2] CHEN Z L, LIU Z Q, WEI T B, *et al.* Improved epitaxy of AlN film for deep-ultraviolet light-emitting diodes enabled by graphene [J]. *Adv. Mater.*, 2019, 31(23): 1807345.
- [3] JIA Y Q, NING J, ZHANG J C, *et al.* Transferable GaN enabled by selective nucleation of AlN on graphene for high-brightness violet light-emitting diodes [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2020, 8(2): 1901632.
- [4] LI L, XU Y, YANG F, *et al.* Optical properties of AlGaIn-based deep-ultraviolet LED grown on graphene/SiC [J]. *Mater. Lett.*, 2022, 317: 132104.
- [5] 蒋永志, 刘凤娇. GaN基量子阱蓝光LED的光学特性研究 [J]. *甘肃科技*, 2015, 31(15): 36-39.
JIANG Y Z, LIU F J. Research on optical characteristics of GaN based quantum well blue light LEDs [J]. *Gansu Sci. Technol.*, 2015, 31(15): 36-39. (in Chinese)
- [6] MISCHKE J, PENNING S, WEISENSEELE E, *et al.* Direct growth of graphene on GaN via plasma-enhanced chemical vapor deposition under N₂ atmosphere [J]. *2D Mater.*, 2020, 7(3): 035019.
- [7] CHEN Z L, CHANG H L, CHENG T, *et al.* Direct growth of nanopatterned graphene on sapphire and its application in light emitting diodes [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2020, 30(31): 2001483.
- [8] LAZAREV S, BAUER S, FORGHANI K, *et al.* High resolution synchrotron X-ray studies of phase separation phenomena and the scaling law for the threading dislocation densities reduction in high quality AlGaIn heterostructure [J]. *J. Cryst. Growth*, 2013, 370: 51-56.
- [9] LI Y, ZHAO Y, WEI T B, *et al.* Van der Waals epitaxy of GaN-based light-emitting diodes on wet-transferred multilayer graphene film [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2017, 56(8): 085506.
- [10] 刘青明, 卢太平, 朱亚丹, 等. 中高温 GaN 插入层厚度对蓝光 LED 光电性能的影响 [J]. *发光学报*, 2016, 37(7): 829-835.
LIU Q M, LU T P, ZHU Y D, *et al.* Effect of medium-high temperature interlayer thickness on the optical and electrical properties of blue light emitting diodes [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2016, 37(7): 829-835. (in Chinese)
- [11] SONG W R, REN F, WANG Y Y, *et al.* GaN-based LEDs grown on graphene-covered SiO₂/Si (100) substrate [J]. *Crystals*, 2020, 10(9): 787.
- [12] KIM Y, CRUZ S S, LEE K, *et al.* Remote epitaxy through graphene enables two-dimensional material-based layer transfer [J]. *Nature*, 2017, 544(7650): 340-343.
- [13] FERNÁNDEZ-GARRIDO S, RAMSTEINER M, GAO G H, *et al.* Molecular beam epitaxy of GaN nanowires on epitaxial graphene [J]. *Nano Lett.*, 2017, 17(9): 5213-5221.
- [14] 曾瑜. 石墨烯上高质量氮化铝薄膜的制备与机理研究 [D]. 西安: 西安电子科技大学, 2022.
ZENG Y. *Study on Preparation and Mechanism of High Quality Aluminum Nitride Films on Graphene* [D]. Xi'an: Xidian University, 2022. (in Chinese)
- [15] CHUNG K, LEE C H, YI G C. Transferable GaN layers grown on ZnO-coated graphene layers for optoelectronic devices [J]. *Science*, 2010, 330(6004): 655-657.
- [16] KONG W, LI H S, QIAO K, *et al.* Polarity governs atomic interaction through two-dimensional materials [J]. *Nat. Mater.*, 2018, 17(11): 999-1004.
- [17] KIM J, LEE M, SHIM H J, *et al.* Stretchable silicon nanoribbon electronics for skin prosthesis [J]. *Nat. Commun.*, 2014, 5: 5747.

- [18] XU F J, SHEN B, LU L, *et al.* Different origins of the yellow luminescence in as-grown high-resistance GaN and unintentional-doped GaN films [J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, 107(2): 023528.
- [19] GUPTA P, RAHMAN A A, HATUI N, *et al.* MOVPE growth of semipolar III-nitride semiconductors on CVD graphene [J]. *J. Cryst. Growth*, 2013, 372: 105-108.
- [20] MOHSENI P K, BEHNAM A, WOOD J D, *et al.* Monolithic III-V nanowire solar cells on graphene *via* direct van der Waals epitaxy [J]. *Adv. Mater.*, 2014, 26(22): 3755-3760.
- [21] CHE J M, SHAO H, CHANG L, *et al.* Doping-induced energy barriers to improve the current spreading effect for AlGaIn-based ultraviolet-B light-emitting diodes [J]. *IEEE Electron Dev. Lett.*, 2020, 41(7): 1001-1004.
- [22] 勾昱君. 大功率LED热管散热器传热强化研究 [D]. 北京: 北京工业大学, 2014.
GOU Y J. *An Investigation on Heat Transfer Augmentation of Large Power LED Heat Pipe Radiators* [D]. Beijing: Beijing University of Technology, 2014. (in Chinese)
- [23] 刘东静. LED关键界面结构热特性及可靠性研究 [D]. 镇江: 江苏大学, 2015.
LIU D J. *Research on Thermal Characteristics and Reliability of the Key Interface Structure of LED* [D]. Zhenjiang: Jiangsu University, 2015. (in Chinese)
- [24] 唐燕如, 赵帝, 易学专, 等. 电流与温度对蓝光LED和白光LED发光性能的影响 [J]. 中国激光, 2021, 48(21): 2103003.
TANG Y R, ZHAO D, YI X Z, *et al.* Current and temperature effects on luminescence properties of blue and white LEDs [J]. *Chin. J. Lasers*, 2021, 48(21): 2103003. (in Chinese)
- [25] 应崇彦. 垂直取向石墨烯界面热质传递机理及高效传热介质和热能回收应用研究 [D]. 杭州: 浙江大学, 2022.
YING C Y. *Research on the Mechanism of Heat and Mass Transfer at the Interface of Vertically Oriented Graphene for Heat-transfer Medium and Heat Recovery Application* [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2022. (in Chinese)
- [26] HAN N, VIET CUONG T, HAN M, *et al.* Improved heat dissipation in gallium nitride light-emitting diodes with embedded graphene oxide pattern [J]. *Nat. Commun.*, 2013, 4: 1452.
- [27] CI H N, CHANG H L, WANG R Y, *et al.* Enhancement of heat dissipation in ultraviolet light-emitting diodes by a vertically oriented graphene nanowall buffer layer [J]. *Adv. Mater.*, 2019, 31(29): 1901624.
- [28] CHANG H L, CHEN Z L, LI W J, *et al.* Graphene-assisted quasi-van der Waals epitaxy of AlN film for ultraviolet light emitting diodes on nano-patterned sapphire substrate [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2019, 114(9): 091107.
- [29] 杨兵. 石墨烯及其界面在LED芯片中的散热和相关机理研究 [D]. 镇江: 江苏大学, 2021.
YANG B. *Research on Heat Dissipation and Related Mechanisms of Graphene and Its Interface in LED Chips* [D]. Zhenjiang: Jiangsu University, 2021. (in Chinese)
- [30] 余彬海, 王焱浩. 结温与热阻制约大功率LED发展 [J]. 发光学报, 2005, 26(6): 761-766.
YU B H, WANG Y H. Junction temperature and thermal resistance restrict the developing of high-power LED [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2005, 26(6): 761-766. (in Chinese)



林易展(1995-),男,福建莆田人,硕士研究生,2017年于厦门理工学院获得学士学位,主要从事III-V化合物半导体的研究。

E-mail: 676680432@qq.com



熊飞兵(1976-),男,江西丰城人,博士,教授,2007年于中国科学院福建物质结构研究所获得博士学位,主要从事稀土发光材料的研究。

E-mail: fbxiang@xmut.edu.cn