

# 發光二極體的效率提升研究

## Research on Efficiency Improvement of Light-Emitting Diodes

蘇炎坤、陳健中

Yan-Kuin Su, Jian-Jhong Chen

在本文中筆者回顧了近些年在發光二極體 (LED) 上的重要研究與技術發展，包含內部量子效率的改善、光取出效率的改善，以及白光發光二極體等方面的探討，並展望未來一些仍可繼續發展的技術，以作出更多的貢獻。

In this article, we review and discuss our important researches and technologies of light-emitting diodes (LEDs) including the improvement of the internal quantum efficiency, the improvement of the light extraction efficiency, and white LEDs. In the future, some technologies still can be well developed to make more contributions.

### 一、前言

因為使用白光發光二極體 (LED) 作為固態照明具有節能、環境保護、堅固耐用及安全等優點，遂已逐漸受到全世界的注意。估計固態照明能降低全球照明之耗電量約 50%，因而世界各國無不期望將來白光 LED 可完全取代一般的白熾燈 (15 lm/W) 和螢光燈 (80–100 lm/W)，因此開發具有高發光效率且高功率的 LED，是目前最迫切需要的。

LED 的發光效率決定於外部量子效率 (external quantum efficiency,  $\eta_{\text{ext}}$ )， $\eta_{\text{ext}}$  為每秒從 LED 發射出來的光子數除以每秒外部注入的電子數， $\eta_{\text{ext}} = \eta_{\text{int}} \times \eta_e$ ，其中  $\eta_{\text{int}}$  為 LED 的內部量子效率 (internal quantum efficiency)，也就是每秒從發光層發射出來的光子數除以每秒從外部注入的電子數，而  $\eta_e$  則

為 LED 的光取出效率 (light extraction efficiency)。內部量子效率主要是決定於 LED 材料好壞及結晶特性的完整度，而外部量子效率則是由內部量子效率與光取出效率所共同決定的。

藍光 LED 由於缺乏大量生產且價格低廉的 GaN 基板，所以目前只能採用藍寶石 (sapphire) 基板，但是由於 GaN 和藍寶石基板間的晶格不匹配約 16%，所以造成磊晶層的缺陷密度高達  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ，因此藍光 LED 的內部量子效率仍有極大的改善空間。除此之外，LED 的發光效率也取決於光取出效率的多寡，LED 的光取出效率受制於材料吸收、Fresnel 損失和臨界角損失等因素，其中影響光取出效率最大的機制為臨界角損失，經過臨界角公式的換算，光取出效率  $\eta_e \cong 1/4n^2 \cong 2-4\%$  (依材料的折射率而定)，因此在光取出效率的提升上有相當大的改善空間。

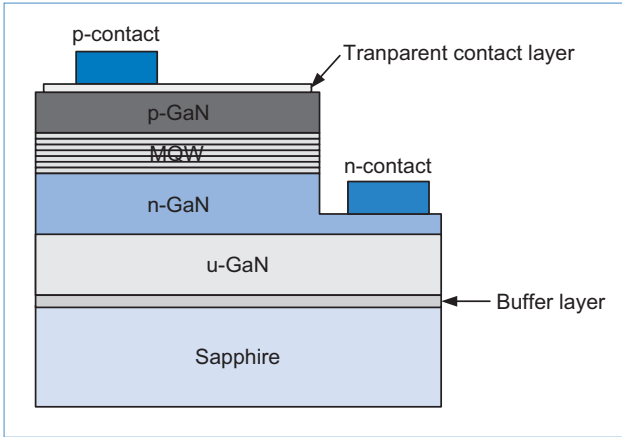


圖 1. 使用緩衝層的發光二極體結構示意圖<sup>(3)</sup>。

近年來世界各研究機構與產業界均投入大量的人力與物力，致力於 LED 的效率提升，如今已蓬勃發展。而我們的研究團隊也不例外，在 LED 的研究已超過 20 年，也有許多成果在各重要期刊與會議上發表，因此筆者將回顧近些年在 LED 研發上的重要成果。

## 二、內部量子效率的改善

### 1. 多層 GaN/SiN 緩衝層

1986 年 Amano 等人 (日本名古屋大學 Akasaki 教授研究團隊) 利用 MOCVD 磊晶成長低溫 AlN 緩衝層 (buffer layer)，成功地成長出透明、沒有表面崩裂的 GaN 薄膜<sup>(1)</sup>。1991 年日本 Nichia 公司的 Nakamura 博士改良使用低溫 GaN 緩衝層<sup>(2)</sup>，並於 1993 年成功地開發出藍光 LED<sup>(3)</sup>，其結構如圖 1 所示，壽命可達數萬小時。而後在 1997 年利用側向磊晶覆蓋成長 (epitaxially lateral overgrowth, ELOG) 技術成長出低缺陷密度的 GaN 薄膜，並成功地開發出雷射二極體<sup>(4)</sup>。之後有許多類似 ELOG 的技術被提出，如 pendeo<sup>(5)</sup> 與 cantilever<sup>(6)</sup> 等。而我們研究團隊使用多層的 GaN/SiN 作為緩衝層<sup>(7-9)</sup>，由於 SiN 薄膜在磊晶成長下有許多奈米尺寸的孔洞，可增強 GaN 的側向成長，因此多層 GaN/SiN 緩衝層 (multiple GaN/SiN buffer layer) 有如 ELOG 的效果，從 TEM 的結果可明顯地看到缺陷密度降低許多，同時 LED 在 20 V 的逆向偏壓下，漏電流從

$1.5 \times 10^{-4}$  A 下降至  $2.5 \times 10^{-6}$  A，大幅提升磊晶品質，而且亮度和可靠度也都有所提升。

### 2. 電荷非對稱共振穿隧結構

當載子注入多重量子井 (multi-quantum well, MQW) 時，有部分載子會脫離多重量子井而不被侷限住，形成漏電流，降低 LED 的效率。因此為了有效捕捉並侷限載子，通常會調整 well 和 barrier 的厚度與多重量子井的數目來達到 LED 最佳的效率。所以我們企圖使用電荷非對稱共振穿隧結構 (charge asymmetric resonance tunneling, CART) 來改善<sup>(10-12)</sup>，此結構是在多重量子井和 n-GaN 層中加入 n-InGaN 層作為電子發射層，從圖 2 的能帶圖來看，電子會先被捕捉在這層裡，然後再穿隧進入多重量子井，可有效提升電子的捕捉效率，因此發光效率也有相當效果的提升。但是由於這層 n-InGaN 太厚，使得 n-InGaN 層和多重量子井的 GaN barrier 之間的晶格不匹配情況甚鉅，因而產生許多缺陷，使得 LED 的漏電流上升。

### 3. 雙級多重量子井

改良電荷非對稱共振穿隧結構，使用雙級多重量子井 (dual-stage MQW) 結構加以取代<sup>(13)</sup>，如圖 3 所示，在 LED 結構中有兩個多重量子井結構，一個是 In 濃度較低的  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$  多重量子井結構，作為電子發射用途；另一個是 In 濃度較高的  $\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}/\text{GaN}$  多重量子井結構，則是作為電子電洞複合發光用途。由於電子注入的效率提升，在 20 mA 的電流操作下，雙級多重量子井 LED 的順向偏壓較傳統 LED 減少 0.3 V，而且雙級多重量子井 LED 的光輸出功率較傳統 LED 增加 47%。除此之外，由於加入一個低 In 濃度的多重量子井結構

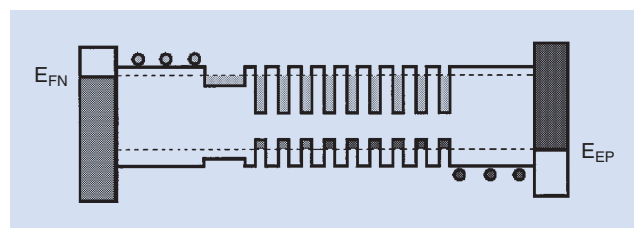


圖 2. 電荷非對稱共振穿隧結構 LED 的能帶圖<sup>(12)</sup>。

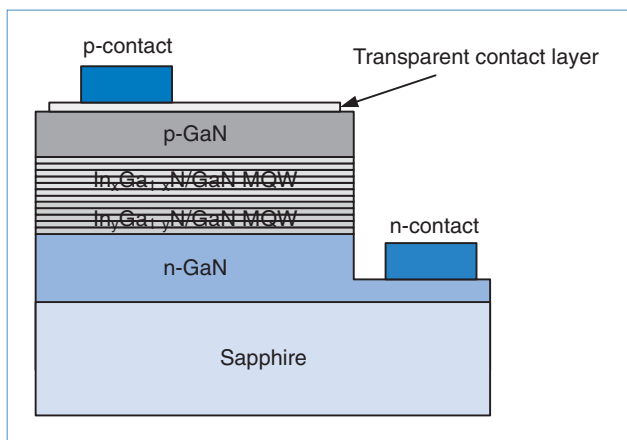


圖 3. 雙多重量子井結構 LED 的示意圖<sup>(13)</sup>。

的關係，可有效抑制在 *n*-GaN 之後直接成長高 In 濃度的多重量子井結構所產生的應力，從 *p*-GaN 表面結果發現缺陷密度有明顯減少，且 LED 的漏電流也下降。

#### 4. 量子點

由於高缺陷密度的 GaN 材料迫使 LED 亮度遠不及理論值，因此發展低維度的量子點 (quantum dot) 結構來克服缺陷密度對於發光層的影響，是普遍認為有效的方式。目前已經發展出許多成長量子點的方式，其中以自我組成為最常使用的方式，例如使用 S-K (Stranski-Krastanov) 成長模式來成長高密度的量子點，並且藉由成長動力學的成長條件，像是用溫度、壓力等去控制量子點的成長，不過量子點對於長晶參數的容許度是相當嚴謹的，因此使

得量子點的形成不易，所以我們研究團隊提出「成長中斷法」來成長量子點<sup>(14-17)</sup>，並成長出多重量子點 (multi-quantum dot) LED 結構，如圖 4 所示<sup>(16)</sup>。在 AFM 和 TEM 分析下，可清楚地看出量子點的結構，多重量子點 LED 在 EL 頻譜分析下，當電流增加時，多重量子點 LED 較多重量子井 LED 有更強烈的波長藍移現象，這是由於量子點有較強的能帶填滿效應 (band filling effect) 影響所致。

### 三、光取出效率的改善

#### 1. *p*-GaN 表面粗化

透過磊晶的方式對 LED 的 *p*-GaN 表面粗化 (surface roughening)，可藉由改變 *p*-GaN 成長溫度<sup>(18)</sup> 或者利用氣體對 *p*-GaN 作表面處理<sup>(19, 20)</sup> 來控制 *p*-GaN 表面的形貌。利用較低的成長溫度成長出具有許多微小孔洞的 *p*-GaN (如圖 5 所示)，這是由於 Ga 原子在低溫下無法獲得足夠的能量遷移至適當的位置，導致在缺陷的地方會形成 V 字形的孔洞。然而此一粗化的表面有助於提升 LED 的出光效率，*p*-GaN 在 800 度下所成長的 LED 相較於 *p*-GaN 在 1000 度下所成長的 LED 亮度可提升 80%。另外，也可藉由 Mg 或 Si 對 *p*-GaN 的表面做處理，形成粗糙的表面，在 Mg 的處理方式上<sup>(19)</sup>，是在成長完 *p*-GaN 後，關掉 TMGa，只通入 NH<sub>3</sub> 和 CP<sub>2</sub>Mg 的情況下，會在表面形成許多 Mg<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub> 的六角柱 (如圖 6(a) 所示)，利用此一方式可達成表面粗化，亮度可提升 66%。在 Si 的處理方式上<sup>(20)</sup>，也是使用

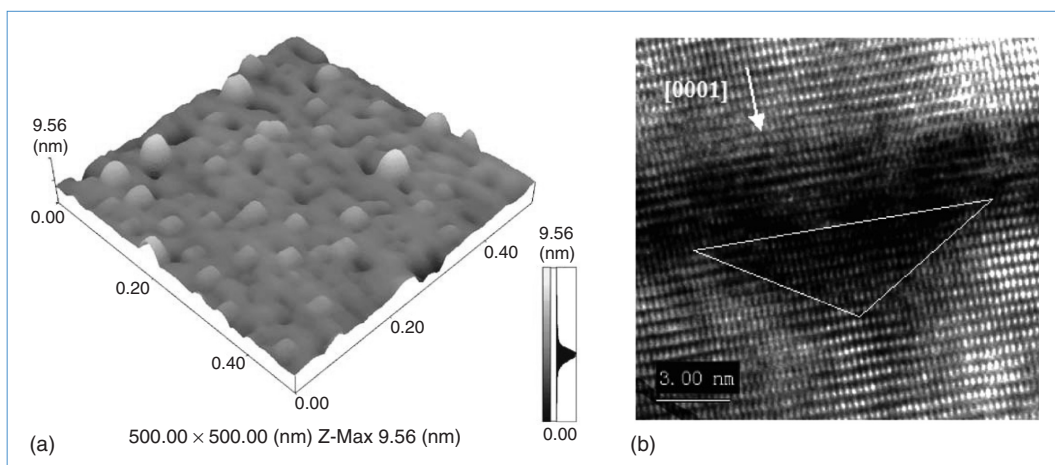


圖 4. InGaN/GaN 量子點的 (a) AFM 圖和 (b) TEM 圖<sup>(16)</sup>。

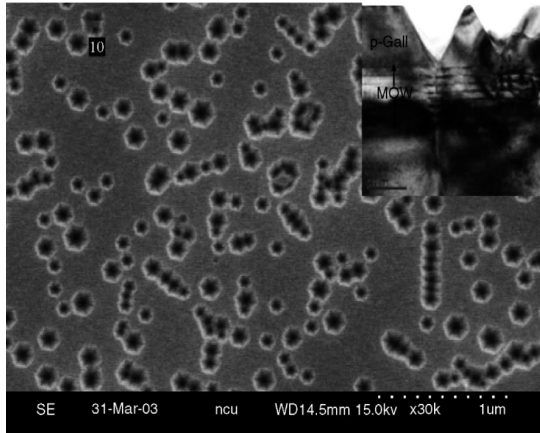


圖 5. 低溫成長的  $p$ -GaN 表面之 SEM 圖<sup>(18)</sup>。

類似的成長方式來形成粗化的表面，如圖 6(b) 所示，可提升 42% 的亮度。以上方法可有效提升亮度，但由於表面形成的是不導電材料，將使順向偏壓略為上升。

## 2. 晶片側面粗化

上述藉由改變  $p$ -GaN 表面形貌有效地破壞了

內部全反射，雖使得正向光更容易從 LED 內部被取出，但效率上的提升仍相當有限，這是由於 LED 的側向光占了 LED 整體發光強度的一大部分，從文獻得知側向光占整體發光強度約 50%<sup>(21)</sup>，所以如何將側向光從 LED 內部取出也是一大重點。除了對  $n$ -GaN 製作結構外<sup>(22)</sup>，LED 晶片形貌的改變也是一個方向<sup>(23)</sup>。筆者研究團隊在晶片側面製作出直徑  $5 \mu\text{m}$  的波浪狀結構<sup>(24)</sup>，如圖 7(a) 所示，此結構可在不影響電性的情況下增加側向光的強度，從圖 7(b) 的光場量測可看出晶片側面粗化 (textured sidewall) 使得側向光大幅增加，在 20 mA 電流操作下，側面粗化的 LED 光輸出功率相較於傳統 LED 約提升 10.7%。從晶片側面粗化結果可知，不管是光取出方式或是粗化機制都與  $p$ -GaN 有些許的差異。

## 3. 奈米圖案化藍寶石基板

日本 Nichia 公司的 Yamada 等人在 2002 年提出圖案化藍寶石基板 (patterned sapphire substrate)

圖 6. 利用 (a) Mg 或 (b) Si 對  $p$ -GaN 表面處理的 SEM 圖<sup>(19,20)</sup>。

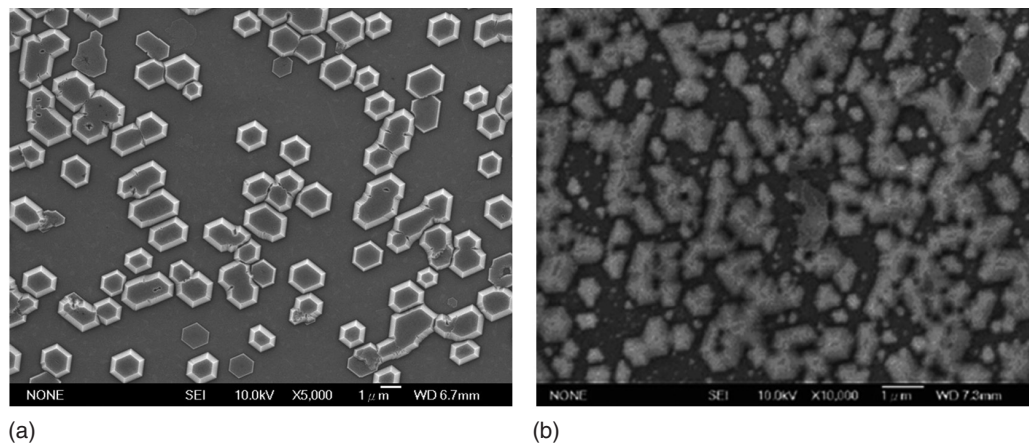
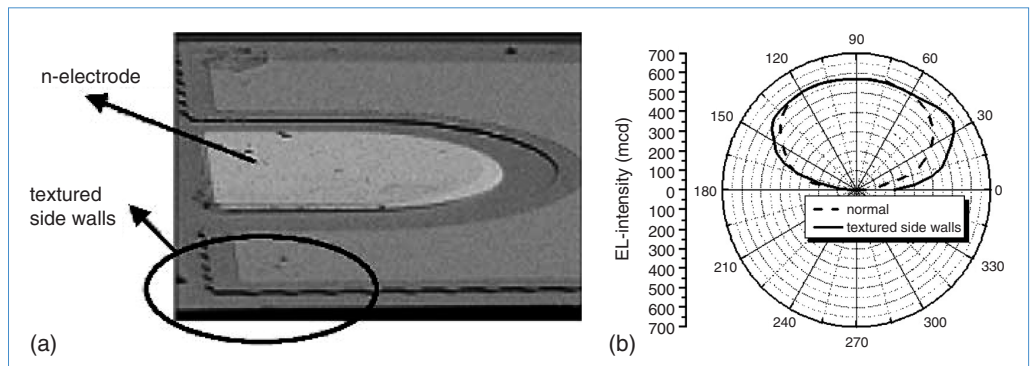


圖 7. (a) LED 側邊粗化的 SEM 圖；(b) 傳統 LED 和側邊粗化 LED 的光場分布圖<sup>(24)</sup>。



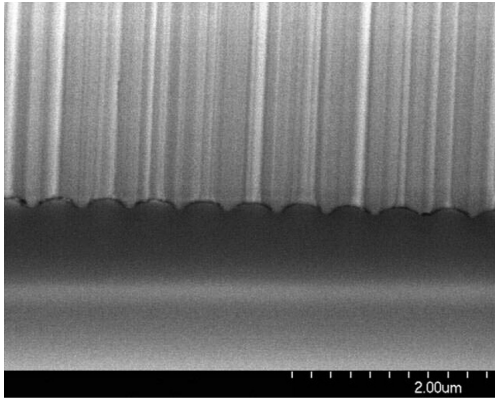


圖 8. LED 成長在奈米圖案化藍寶石基板上的 SEM 側視圖<sup>(27)</sup>。

的概念<sup>(25)</sup>，可有效提升光取出效率。直到今天，藉由曝光顯影技術製作出來的微米尺寸圖案化藍寶石基板已被商品化產品大量使用。雖然奈米尺寸圖案化藍寶石基板的概念早已被熱烈地討論，但實際上卻缺乏可大量生產奈米結構的技術，於是我們研究團隊提出利用奈米球微影術 (nanosphere lithography) 搭配 ICP (inductively coupled-plasma) 乾蝕刻技術可大量生產出奈米圖案化藍寶石基板 (nano-patterned sapphire substrate)<sup>(26-28)</sup>。此技術一開始利用旋轉塗布將聚苯乙烯 (polystyrene) 奈米球排列成六角最密堆積的奈米球陣列，再使用 ICP 乾蝕刻出奈米結構。如圖 8 所示，我們成功地製作出直徑 450 nm、間距 50 nm 及深度 150 nm 的奈米圖案化藍寶石基板，並將 LED 成長在此基板上。相較於傳統 LED 與微米圖案化藍寶石基板 (micro-patterned sapphire substrate) 的 LED，光輸出功率分別可提升約 30% 與 11%，此有效提升主要是由於奈米結構可以更有效地散射原本內部全反射的光。

#### 四、白光發光二極體

一般商品化的白光 LED 通常利用螢光粉激發藍光 LED，而產生白光。在此我們研究團隊提出不使用螢光粉方式，即可產生白光。

##### 1. 主動層共摻雜

利用 MOCVD 磊晶技術，將 Si 與 Zn 對多層

量子井結構進行共摻雜，並在波長 500 nm—560 nm 之間有很強的施體—受體間能量傳輸，可產生白光<sup>(29, 30)</sup>。操作在 10 mA 時光輸出效率約 51 m/W，相較於螢光物質轉換之白光 LED 的發光效率在 10 mA 約為 15 lm/W 仍屬偏低。

##### 2. 多層堆疊量子井結構

在同一基板上，連續磊晶成長綠光 LED 結構與藍光 LED 結構 (如圖 9 所示)，當注入電流時，可獲得近似白光<sup>(31)</sup>。為了避免闌流體效應，因此採用  $2.1 \times 2.1 \text{ mm}^2$  的大面積 LED，當注入電流小於 200 mA 時，CIE 色度座標  $x = 0.2$ 、 $y = 0.3$ ，輸出功率約為 4.2 mW，發光效率為 81 lm/W，色溫為 9000 K。

##### 3. 聚合物與量子點的雙混合

利用合成的紅光放射 CdSe/ZnS 量子點結合發出綠光的 DBPPV 聚合物被混合在藍光 LED 上，可成功地產生白光<sup>(32-34)</sup>。當覆蓋的聚合物與量子點混合物薄膜厚度達到  $0.61 \mu\text{m}$  時，對應 CIE 色度座標  $x = 0.33$ 、 $y = 0.36$ ，落在白光範圍內，並且色溫約為 5300 K；然而當厚度更進一步增加到  $0.87 \mu\text{m}$  時，CIE 色度座標被移動到黃光區域  $x = 0.43$ 、 $y = 0.46$ 。同時發光光譜顯示超過 90% 的藍光被有效地轉移到綠光和紅光。

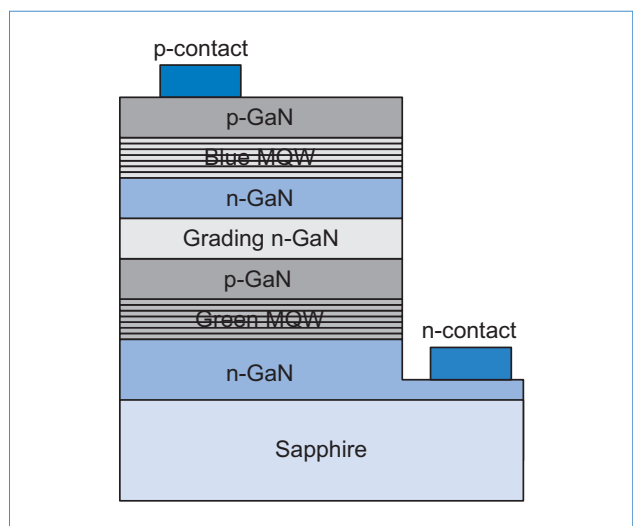


圖 9. 多層堆疊量子井結構白光 LED 的示意圖<sup>(31)</sup>。

## 五、結論

本文回顧了筆者研究團隊在發光二極體上的重要研究，在內部量子效率上，提出「多層 GaN/SiN 緩衝層」改善磊晶品質、「電荷非對稱共振穿隧結構」和「雙級多重量子井」改善電子注入多重量子井的效率，以及「量子點」改善發光效率；在光取出效率上，提出「*p*-GaN 表面粗化」、「晶片側面粗化」和「奈米圖案化藍寶石基板」增加光的取出；在白光發光二極體上，提出「主動層共摻雜」、「多層堆疊量子井結構」和「聚合物與量子點的雙混合」，不同於商品化白光 LED 的結構，期望新技術可以增進白光 LED 的效率。以上這些技術可作為未來研究發展之參考，同時我們研究團隊將會更加精進，期許未來能夠有更重大的貢獻。

## 參考文獻

1. I. Akasaki, H. Amano, K. Hiramatsu, and N. Sawaki, *Institute of Physics Conference Series*, **91**, 633 (1988).
2. S. Nakamura, M. Senoh, S. I. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and K. Chocho, *Japanese Journal of Applied Physics*, **36**, L1568 (1997).
3. S. Nakamura, *Japanese Journal of Applied Physics*, **30**, L1705 (1991).
4. S. Nakamura, *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, **3**, 712 (1997).
5. A. M. Roskowski, E. A. Preble, S. Einfeldt, P. M. Miraglia, and R. F. Davis, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **38**, 1006 (2002).
6. C. I. H. Ashby, C. C. Mitchell, J. Han, N. A. Missert, P. P. Provencio, D. M. Follstaedt, G. M. Peake, and L. Griego, *Applied Physics Letters*, **77**, 3233 (2000).
7. C. H. Kuo, S. J. Chang, Y. K. Su, C. K. Wang, L. W. Wu, J. K. Sheu, T. C. Wen, W. C. Lai, J. M. Tsai, and C. C. Lin, *Solid-State Electronics*, **47**, 2019 (2003).
8. C. H. Liu, R. W. Chuang, S. J. Chang, Y. K. Su, C. H. Kuo, J. M. Tsai, and C. C. Lin, *Materials Science and Engineering B*, **111**, 214 (2004).
9. S. C. Wei, Y. K. Su, S. J. Chang, S. M. Chen, and W. L. Li, *IEEE Transactions on Electron Devices*, **52**, 1104 (2005).
10. T. C. Wen, S. J. Chang, L. W. Wu, Y. K. Su, W. C. Lai, C. H. Kuo, C. H. Chen, J. K. Sheu, and J. F. Chen, *IEEE Transactions on Electron Devices*, **49**, 1093 (2002).
11. C. H. Chen, Y. K. Su, S. J. Chang, G. C. Chi, J. K. Sheu, J. F. Chen, C. H. Liu, and Y. H. Liaw, *IEEE Electron Device Letters*, **23**, 130 (2002).
12. C. H. Chen, S. J. Chang, Y. K. Su, G. C. Chi, J. K. Sheu, and J. F. Chen, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **8**, 284 (2002).
13. S. J. Chang, S. C. Wei, Y. K. Su, and W. C. Lai, *Journal of the Electrochemical Society*, **154**, H871 (2007).
14. L. W. Ji, Y. K. Su, S. J. Chang, L. W. Wu, T. H. Fang, J. F. Chen, T. Y. Tsai, Q. K. Xue, and S. C. Chen, *Journal of Crystal Growth*, **249**, 144 (2003).
15. L. W. Ji, Y. K. Su, S. J. Chang, L. W. Wu, T. H. Fang, J. F. Chen, T. Y. Tsai, Q. K. Xue, and S. C. Chen, *Materials Letters*, **57**, 4218 (2003).
16. L. W. Ji, Y. K. Su, S. J. Chang, C. S. Chang, L. W. Wu, W. C. Lai, X. L. Du, and H. Chen, *Journal of Crystal Growth*, **263**, 114 (2004).
17. Y. K. Su, S. J. Chang, L. W. Ji, C. S. Chang, L. W. Wu, W. C. Lai, T. H. Fang, and K. T. Lam, *Semiconductor Science and Technology*, **19**, 389 (2004).
18. C. H. Liu, R. W. Chuang, S. J. Chang, Y. K. Su, L. W. Wu, and C. C. Lin, *Materials Science and Engineering B*, **112**, 10 (2004).
19. C. M. Tsai, J. K. Sheu, W. C. Lai, Y. P. Hsu, P. T. Wang, C. T. Kuo, C. W. Kuo, S. J. Chang, and Y. K. Su, *IEEE Electron Device Letters*, **26**, 464 (2005).
20. Y. P. Hsu, S. J. Chang, Y. K. Su, S. C. Chen, J. M. Tsai, W. C. Lai, C. H. Kuo, and C. S. Chang, *IEEE Photonics Technology Letters*, **17**, 1620 (2005).
21. I. Niki, Y. Narukawa, D. Morita, S. Sonobe, T. Mitani, and H. Tamaki, *Proceedings of SPIE*, **5187**, 1 (2004).
22. H. W. Huang, H. C. Kuo, J. T. Chu, C. F. Lai, C. C. Kao, T. C. Lu, S. C. Wang, R. J. Tsai, C. C. Yu, and C. F. Lin, *Nanotechnology*, **17**, 2998 (2006).
23. J. Baur, B. Hahn, M. Fehrer, D. Eisert, W. Stein, A. Plössl, F. Kühn, H. Zull, M. Winter, and V. Härle, *Physica Status Solidi (a)*, **194**, 399 (2002).
24. C. S. Chang, S. J. Chang, Y. K. Su, C. T. Lee, Y. C. Lin, W. C. Lai, S. C. Shei, J. C. Ke, and H. M. Lo, *IEEE Photonics Technology Letters*, **16**, 750 (2004).
25. M. Yamada, T. Mitani, Y. Narukawa, S. Shioji, I. Niki, S. Sonobe, K. Deguchi, M. Sano, and T. Mukai, *Japanese Journal of Applied Physics*, **41**, L1431 (2002).
26. Y. K. Su, J. J. Chen, C. L. Lin, S. M. Chen, W. L. Li, and C. C. Kao, *Japanese Journal of Applied Physics*, **47**, 6706 (2008).
27. J. J. Chen, Y. K. Su, C. L. Lin, S. M. Chen, W. L. Li, and C. C. Kao, *IEEE Photonics Technology Letters*, **20**, 1193 (2008).
28. Y. K. Su, J. J. Chen, C. L. Lin, S. M. Chen, W. L. Li, and C. C. Kao, *Journal Crystal Growth*, **311**, 2973 (2009).
29. J. K. Sheu, C. J. Pan, G. C. Chi, C. H. Kuo, L. W. Wu, C. H. Chen, S. J. Chang, and Y. K. Su, *IEEE Photonics Technology Letters*, **14**, 450 (2002).

30. S. J. Chang, L. W. Wu, Y. K. Su, C. H. Kuo, W. C. Lai, Y. P. Hsu, J. K. Sheu, S. F. Chen, and J. M. Tsai, *IEEE Transactions on Electron Devices*, **50**, 519 (2003).
31. C. H. Chen, S. J. Chang, Y. K. Su, J. K. Sheu, J. F. Chen, C. H. Kuo, and Y. C. Lin, *IEEE Photonics Technology Letters*, **14**, 908 (2002).
32. Y. K. Su, P. C. Tsai, C. Y. Huang, and Y. C. Chen, *IEEE Electron Device Letters*, **29**, 575 (2008).
33. C. Y. Huang, Y. K. Su, Y. C. Chen, P. C. Tsai, C. T. Wan, and W. L. Li, *IEEE Electron Device Letters*, **29**, 711 (2008).
34. Y. C. Chen, C. Y. Huang, Y. K. Su, W. L. Li, C. H. Yeh, and Y. C. Lin, *IEEE Transactions on Nanotechnology*, **7**, 503 (2008).



蘇炎坤先生為國立成功大學電機工程博士，現任國立成功大學電機系與微電子研究所教授暨崑山科技大學校長。

Yan-Kuin Su received his Ph.D. in electrical engineering from National Cheng Kung University. He is currently a professor in the Department of Electrical Engineering and Institute of Microelectronics at National Cheng Kung University. He is also the President of Kun Shan University.



陳健中先生現為國立成功大學微電子研究所博士班學生。

Jian-Jhong Chen is a Ph.D. student in the Institute of Microelectronics at National Cheng Kung University.