

低压下激光剥离的研究

林 飞, 陈志远, 刘宝林, 朱丽虹, 李晓莹, 曾凡明

(厦门大学 物理与机电工程学院, 福建 厦门 361005)

摘要:为了研究低压环境对激光剥离的影响,利用准分子激光剥离系统和真空腔对 GaN/蓝宝石样品分别在低压下和常压下进行多脉冲激光照射,之后用台阶仪测量样品的分解深度,得知相比常压环境,低压下 GaN 分解深度在脉冲次数为 10 次、20 次、30 次时分别增加了为 10.2%、19.0%、24.3%,之后结合 GaN 材料分解过程和脉冲激光照射 GaN/蓝宝石结构过程进行理论分析得到相应低压和常压下的 GaN 材料的理论分解深度,得到与实验一致的趋势。证明了低压环境能提高激光剥离速率。

关键词: GaN; 激光剥离; 多脉冲激光照射; 激光剥离速率

中图分类号: TN24-34

文献标识码: A

文章编号: 1004-373X(2014)12-0156-04

Study on laser lift-off of GaN material in low pressure

LIN Fei, CHEN Zhi-yuan, LIU Bao-lin, ZHU Li-hong, LI Xiao-ying, ZENG Fan-ming

(School of Physics and Electromechanical Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, China)

Abstract: In order to study the effects of low-pressure environment on laser lift-off process, the experiment that a GaN/sapphire sample was irradiated by an excimer laser lift-off system in different pressure was carried out, and then the decomposition depth of the sample was measured with a profilometer. The results show that the decomposition depth of GaN in low pressure is increased by 10.2%, 19.0% and 24.3% which corresponds to the number of pulses of 10, 20 and 30. One-dimensional heat flow model of GaN/sapphire structure irradiated by laser was established. The temperature field in GaN was calculated and analyzed. The decomposition depth of GaN in different pressure was obtained. The theoretical calculation result is consistent with the experimental result. It indicates that the efficiency of laser lift-off in low pressure environment is higher than that in ordinary pressure environment.

Keywords: GaN; laser lift-off; multipulse laser irradiation; laser lift-off rate

0 引言

由于 GaN 材料禁带宽度宽,性质稳定,被广泛应用于蓝光、绿光以及紫外光 LED 器件的生产中^[1-2],其在众多领域都扮演着重要的角色,所以一直以来都吸引着极大的关注。目前主要是通过蓝宝石衬底上的异质外延得到 GaN 基 LED,但由于蓝宝石与 GaN 晶格的失配大,使得器件外延层中会存在大量位错和层错,器件效率受到限制,并且蓝宝石的电导率和热导率差,影响器件散热,且同侧电极会导致电流阻塞效应等问题。这些导致了 GaN 基 LED 的寿命短、输出功率低。1996 年 Kelly 等人提出了应用激光剥离技术将 GaN 外延层和蓝宝石衬底剥离。激光剥离技术是指用一定波长的激光

从蓝宝石衬底一侧照射外延片,这束激光只会被蓝宝石衬底与 GaN 界面处的 GaN 材料所吸收, GaN 受热分解生成金属 Ga 和气体 N₂,从而实现与蓝宝石衬底的剥离。激光剥离技术结合键合技术,可以将 GaN 外延层转移到导电、导热性能更好的其他衬底(如 Si、金属)上。首先可以实现在外延层的两侧制备 P、N 电极,从而可以减小电极与焊盘对光的遮挡、吸收;其次,两侧电极结构,使得电流几乎全部垂直地流过 LED 外延层,从而避免了电流阻塞效应;最后, Si 或金属衬底的热导率相比蓝宝石明显更优,可以有效地改善 LED 的散热情况,提高其使用寿命。激光剥离技术从根本上解决了蓝宝石衬底带给 GaN 基 LED 的不利影响,因为在大功率蓝光 LED 芯片制作工艺中,是应用前景十分广阔的一种技术。但是激光剥离 GaN 外延层和蓝宝石衬底过程中存在着以下的问题:

(1) 剥离过程会产生 N₂ 气体,若 N₂ 气体无法顺利排

收稿日期 2014-03-15

基金项目 国家自然科学基金(11104230)

出,界面处将产生较强气压,引起 GaN 膜碎裂。

(2) 过高能量密度的激光束也会对 GaN 膜造成损伤,引起在剥离过程中 GaN 膜产生裂纹。

(3) 激光光束照射的位置、环境的压强、衬底的温度、GaN 膜厚度对激光剥离过程都有着一定影响。因此本文研究了在低压环境下进行激光剥离的方法,一方面降低激光剥离时 GaN 发生分解反应的环境气压,则 GaN 分解所需要的温度也随之降低,所要求的激光照射系统进行激光剥离的阈值能量密度也降低,这样就可以放大激光光斑的面积,大大加快激光剥离的速度,实现快速大面积均匀的激光剥离;另一方面低压环境可以实现及时地对 N₂ 气体的抽取,从而避免 GaN 膜的破裂。

1 实 验

本实验采用金属有机化学气相沉积法在蓝宝石(001)衬底上生长 GaN 外延层。样品结构如图 1 所示。样品包括 430 μm 厚的蓝宝石衬底,2 μm 厚的本征 GaN 缓冲层,2 μm 厚的 n-GaN。采用脉冲宽度为 25 ns,波长为 248 nm 的 KrF 准分子激光器在室温下分别在低压环境下和常压环境下从 GaN 一侧对同一样品进行脉冲激光照射 10 次、20 次、30 次,激光脉冲频率为 1 Hz,能量密度为 370 mJ/cm²。之后用盐酸去除热分解过程中产生的金属 Ga 及其氧化物,然后利用台阶仪测量 GaN 分解深度。

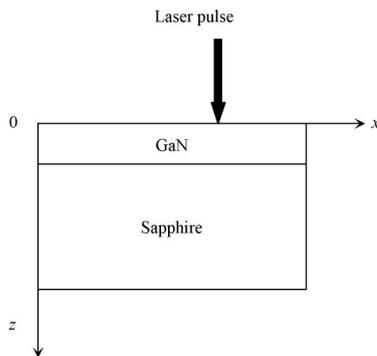


图 1 GaN/蓝宝石结构示意图

对此过程建立模型进行理论计算分析能够帮助更好理解低压环境对激光剥离的影响。在 GaN 热分解的化学反应式中,吉布斯自由能变化量如下:

$$\Delta G = G_{\text{Ga}(l)} + \frac{1}{2}G_{\text{N}_2(g)} - G_{\text{GaN}(s)} \quad (1)$$

$$G = H - TS = H^* + (a - S^*)T - aT \ln T - \frac{bT^2}{2} - \frac{c}{2T} - \frac{dT^3}{6} \quad (2)$$

式中 H^* , S^* , a , b , c 和 d 的值由相关热力学数据手册给出。

当 GaN 的热分解反应达到平衡时,其平衡常数 K 定

义为:

$$K = e^{-\Delta G/RT} = \frac{u_{\text{Ga}}u_{\text{N}_2}^{1/2}}{u_{\text{GaN}}} = \left(\frac{P_{\text{N}_2}}{P_0}\right)^{1/2} \quad (3)$$

式中 R 为普适气体常数, $R=8.314$; u 是物质活度, $u = \frac{P_{\text{N}_2}}{P_0}$, P_0 为标准大气压 $P_0=1 \text{ bar}$ 。由式(1)~式(3)可得:

当 $T < 700 \text{ K}$ 时:

$$\ln p = 32.6414 - 37949.0017T^{-1} + 22973.298T^{-2} \quad (4)$$

当 $T > 700 \text{ K}$ 时:

$$\ln p = 32.6414 - 37946.8337T^{-1} - 14313.2066T^{-2} \quad (5)$$

由式(4)、式(5)可得:当 $P=1.01325 \text{ bar}$ 时,也就是常压下,分解温度为 1163 K ;当 P 降到 $6 \times 10^{-2} \text{ torr}$ 时,分解温度是 902 K 。

现在分析受激光作用后 GaN 外延层的温度场分布。利用无限大面热源作用在半无限体表面的一维热传导模型进行计算。按图 1 所示建立坐标系。

(1) 加热过程 ($0 < t \leq \tau$):

一维热传导方程形式如下:

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\alpha}{\tau \rho C_p} I(z,t) + \frac{1}{\rho C_p} \frac{\partial}{\partial z} \left(k \frac{\partial T}{\partial z} \right) \quad (6)$$

式中 $I(z,t)$ 是 z 处 t 时激光照射的能量密度(单位: mJ/cm^2); α 为材料的光学吸收系数; τ 是脉冲激光的周期; T 为 GaN 材料的温度; V 为体积; k 为热传导系数, C_p 为比热容。

假设 GaN 材料为均匀吸收介质,入射的激光功率密度可以表示为:

$$I(z,t) = I_0(t)(1-R)e^{-\alpha z} \quad (7)$$

式中 $I_0(t)$ 是脉冲激光功率密度, R 是界面反射率。

初始条件:

$$T|_{t=0} = T_0 \quad (8)$$

边界条件:

$$\frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=0} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=L \rightarrow \infty} = 0 \quad (9)$$

采用格林函数求解,可得 GaN 材料内的温度场分布为:

$$T(z,t) - T_0 = \left(\frac{I_0(1-R)}{\tau k} \right) \sqrt{K_d t} \cdot \text{ierf} \left[\frac{z}{2\sqrt{K_d t}} \right] \quad (10)$$

式中余误差函数:

$$\text{ierf}(z) = \left(\frac{1}{\sqrt{\pi}} \right) \exp(-z^2) - z(1 - \text{erf}(z))$$

误差函数:

$$\text{erf}(z) = \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}} \right) \int_0^z (-\xi^2) d\xi, \quad K_d = \frac{k}{\rho C_p}$$

(2) 冷却过程($t > \tau$):

一维热传导方程形式如下:

$$\frac{\partial T}{\partial t} - K_d \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = 0 \tag{11}$$

初始条件: $T|_{t=\tau_0} = T_{\tau_0}$,

边界条件: $\frac{\partial T}{\partial z}|_{z=0} = 0, \frac{\partial T}{\partial z}|_{z=L \rightarrow \infty} = 0$

因此,脉冲作用时间过后,GaN材料内的温度场分布为:

$$T(z,t) - T_0 = \left(2 \frac{I_0(1-R)}{\tau k} \right) \left[\sqrt{K_d t} \cdot \text{ierf} \left(\frac{z}{2\sqrt{K_d t}} \right) - \sqrt{K_d(t-\tau_0)} \cdot \text{ierf} \left(\frac{z}{2\sqrt{K_d(t-\tau_0)}} \right) \right] \tag{12}$$

理论计算也同样是以脉冲宽度 25 ns,波长为 248 nm,能量密度为 370 mJ/cm²的 KrF 紫外脉冲激光光源为例,并设定环境温度 T_0 为 25 °C,表 1 给出 GaN 材料的相关热力学数据。

表 1 GaN 材料的热力学系数

Material	ρ /(10 ³ kg·m ⁻³)	k /(W·m ⁻¹ ·K ⁻¹)	C_p /(J·kg ⁻¹ ·K ⁻¹)	α /(10 ⁷ m ⁻¹)	R
GaN	6.11	130	485.6	4.4	0.3

2 结果和讨论

图 2 为实验中常压和低压环境下 GaN 分解深度 z 随脉冲次数 n 的变化情况。由图可以看出低压环境下 GaN 分解深度 z_n 明显大于常压环境下 GaN 分解深度 z_a , 低压下 GaN 分解深度在脉冲次数为 10 次、20 次、30 次时分别增加了为 10.2% ,19.0% ,24.3%。

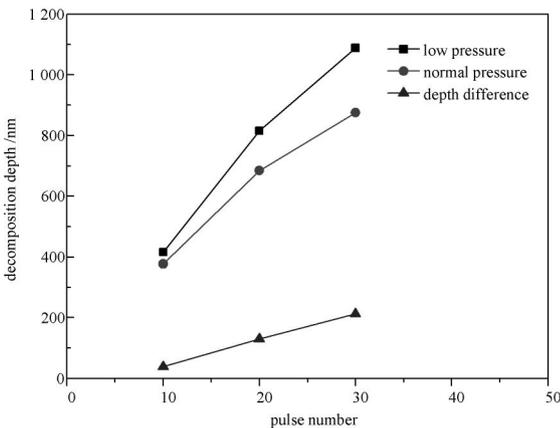


图 2 实验下常压和低压环境下 GaN 分解深度 z 随脉冲次数 n 的变化情况

图 3 为理论计算下 $t=\tau$ 时 GaN 材料内温度随深度分布图。由图可以看出,GaN 材料内温度随着 z 的增加而

迅速降低。图 4 是理论计算下 GaN 材料内温度场分布图,可以看出在脉冲激光作用下,相同 z 值的 GaN 层内的温度先是快速上升,由于热传导作用,这段过程一般长于激光作用时间,而后温度再快速下降。若这期间 GaN 层的最高温度大于等于 GaN 的分解温度,则该处的 GaN 即会分解。GaN 材料能发生分解的最大的 z 值即为 GaN 材料在该条件下理论分解深度。同时由图 4 也可以得知,GaN 材料内的温度在下降阶段,刚开始速率很快,而后随着时间的增加而渐渐趋于稳定,在 $t=0.01$ s 时 GaN 材料界面处温度即降为 25.764 1 °C。故激光脉冲频率为 1 Hz 时,可不必考虑连续激光脉冲作用叠加效应。

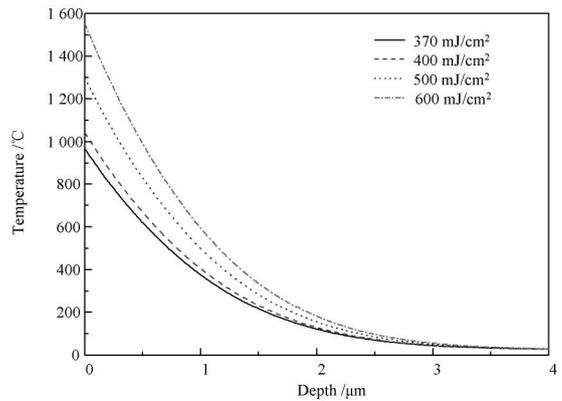


图 3 理论下 $t=\tau$ 时 GaN 材料内温度随深度分布图

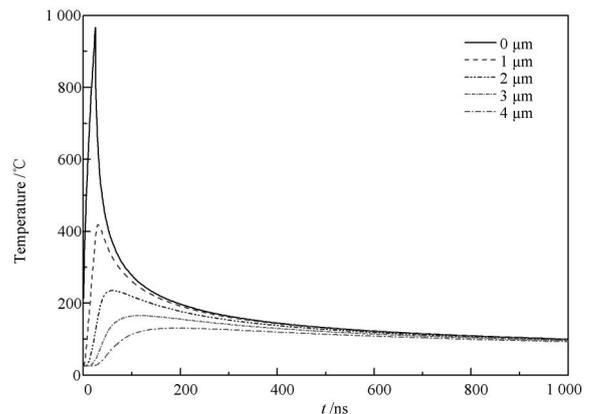


图 4 单脉冲激光照射下 GaN 材料内温度场分布图

表 2 为 GaN 材料分别在低压环境和常压环境中理论分解深度,可以得知低压下 GaN 分解深度明显大于常压下,这与实验的现象是相吻合的。但是理论计算下低压的 GaN 分解深度要远远大于实验中 GaN 在低压下的分解深度,一方面是因为设备老化和真空腔气密性问题,实验中真空腔的真空度并未能达到 6×10^{-2} Torr;另一方面是因为理论计算未考虑与外界的热交换,而在实验中,因为低压下 N_2 被抽走的同时也带走了大量的热,GaN 材料内的温度不会那么高。

3 结 语

低压环境一方面能降低 GaN 材料的分解温度,降低激光剥离的阈值功率,从而可以通过放大光斑面积来得到与常压下一样的剥离效果,即可实现快速地将 GaN 薄膜从蓝宝石衬底上剥离下来;另一方面低压环境有助于及时地抽取 GaN 材料分解时产生的 N_2 气体,这对实现完整地将 GaN 薄膜从蓝宝石衬底上剥离下来是至关重要的。

表2 常压和低压下 GaN 材料理论分解深度

环境压强 /Torr	GaN 分解 温度 /K	分解深度 z /nm	分解深度差 Δz /nm
760	1 163	98	
6×10^{-2}	902	502	404

本文先利用 KrF 准分子激光器,分别在低压和常压环境下对同一样品进行多脉冲照射,激光能量密度为 370 mJ/cm^2 ,脉冲频率为 1 Hz,之后利用台阶仪测量样品在不同条件下的分解深度,得知相比常压环境,GaN 材料在低压环境下分解更深,低压下 GaN 分解深度在脉冲次数为 10 次、20 次、30 次时分别增加了为 10.2%, 19.0%, 24.3%,之后通过对 GaN 材料分解过程和激光照射 GaN/蓝宝石结构过程进行理论分析,得出不同环境气压下的 GaN 材料理论分解深度,在理论上得到了同样的趋势,证明了低压下激光剥离的优越性。

参 考 文 献

[1] KOIKE Masayoshi, SHIBATA Naoki, KATO Hisaki, et al. Development of high efficiency GaN-Based multi-quantum-well light-emitting diodes and their applications [J]. IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics, 2002, 8(2): 271-

作者简介: 林 飞(1990)男,福建莆田人,在读硕士研究生。研究方向为 GaN 基 LED。

刘宝林,男,教授。研究方向为 GaN 基 LED。

(上接第 155 页)

应研究[J].光子学报,1996,25(3):273-278.

[3] 陈军,李永丽.应用于高压电缆的光纤分布式温度传感技术[J].电力系统及自动化学报,2005,17(3):47-49.
[4] 刘林红,张在宣,余向东,等.30 km 分布式光纤测温传感器的空间分辨率研究[J].仪器仪表学报,2005,26(11):1195-1210.
[5] 何明科,张佩宗,李永丽.分布式光纤测温技术在电力设备过热监测中的应用[J].电力设备,2007(10):30-32.
[6] 彭超,赵建康,苗付贵.分布式光纤监测技术在线监测电缆温度[J].高电压技术,2006(8):43-45.

作者简介: 肖 恺(1983)男,湖北武汉人,硕士。研究方向为光纤传感。

277.

[2] NAKAMURA S, SENOH M, NAGAHAMA S, et al. Violet InGaN/GaN/AlGaIn based laser diodes with an output power of 420 mW [J]. Jpn. Journal of Applied Physics, 1998, 37(6A): 1627-1629.
[3] EGAWA T, OHMURA H, ISHIKAWA H, et al. Demonstration of an In-GaN-based light-emitting diode on an AlN/Sapphire template by metalorganic chemical vapor deposition [J]. Applied Physics Letters, 2002, 81(2): 292-294.
[4] SHEN X Q, MATSUHATA H, OKUMURA H. Reduction of the treading dislocation density in GaN films grown on vicinal sapphire (0001) substrates [J]. Applied Physics Letters, 2005, 86(2): 021912-021913.
[5] LEE Chia-Ming, CHUO Chang-Ceng, CHEN I-Ling, et al. High-brightness inverted InGaIn-GaN multi-quantum-well light-emitting diode without a transparent conductive layer [J]. IEEE Electron Device Letters, 2003, 24(3): 156-158.
[6] KELLY M K, AMBACHER O, DAHLHEIMER B, et al. Optical patterning of GaN films [J]. Applied physics letters, 1996, 69(12): 1749-1751.
[7] 王如. HVPE 法制备 GaN 体材料的研究[D].天津:河北工业大学,2010.
[8] AGRANAT M B, BENDITSKII A A, GANDELMAN G M. Stepanov. Sov. Phys. JETP 52 (1980) 27.
[9] MARUSKA H P, TIETJEN J J. The preparation and properties of vapor deposited single-crystal-line GaN [J]. Applied Physics Letters, 1969, 15(10): 327-329.
[10] 王婷,郭霞,刘斌,等.激光剥离 Al_2O_3 /GaN 中 GaN 材料温度场的模拟[J].光电工程,2006(3):101-105.
[11] 黄生荣,刘宝林.激光剥离 GaN/Al₂O₃ 材料温度分布的解析分析[J].光电子·激光,2004,15(7):831-834.
[12] 张鹤.准分子激光剥离紫外发光二极管的研究[D].长春:长春理工大学,2012.

[7] 郭兆坤,郑晓亮,陆兆辉,等.分布式光纤温度传感技术及其应用[J].中国电子科学研究院学报,2008(5):543-546.

[8] 刘媛,张勇,雷涛,等.分布式光纤测温技术在电缆温度监测中的应用[J].山东科学,2008,21(6):50-54.

[9] 张在宣,王剑锋,刘红林,等.30 km 远程分布式光纤拉曼温度传感器系统的实验研究[J].中国激光,2004,31(5):613-616.

[10] 崔文华,陈志斌.分布式光纤温度监测与报警系统的研究[J].红外与激光工程,2002,31(2):175-178.