

逢甲大學學生報告 ePaper

報告題名:

製作多重對稱性之準晶格光子晶體提升發光二極體之 光萃取效率

Making multiple symmetry of quasi- lattice photonic crystals to enhance the light emitting diode of the extraction efficiency

作者: 黃榛莉 系級: 光電學系三甲 學號: D0253228 開課老師: 賴俊峰 副教授 課程名稱: 專題研究(一) 開課系所: 光電學系 開課學年: 104 學年度 第二學期



中文摘要

本專題研究計畫主旨為開發新型紫外光全像術微影系統,利用奈米結構相位 光罩搭配紫外光全像術微影系統,進而將1道雷射光分成4道雷射光,並可利用 旋轉樣品曝光角度在光阻上形成多重對稱性之準晶格光子晶體(quasi-photonic crystals, QPhCs)結構圖案。我們提出此方法相對於過去的全像術微影技術,利用 奈米結構相位光罩可以大幅的減少曝光和顯影次數,如此得到的奈米結構可以更 為穩定。我們也將此 QPhCs 結構製作於藍光發光二極體(light-emitting diodes, LEDs)晶粒表面來提升光萃取效率。實驗結果得到製作4 重對稱性 PhCs 結構之 LEDs 所量測出的光萃取效率比平面 LEDs 提升了 1.27 倍;而製作8 重對稱性 QPhCs 之 LEDs 結構的光萃取效率也比平面 LEDs 提升了 1.56 倍。最後我們也進 一步利用8 邊形奈米結構相位光罩進行繞射圖案之模擬工作,並討論旋轉樣品特 定的曝光角度,可進一步得到特殊新奇繞射圖形。故此專題研究計畫所提出之計 畫與研究成果,確實有助於進一步提升藍光 LEDs 之光萃取效率。



關鍵詞:發光二極體、準晶格光子晶體、全像術微影。

Abstract

In this project as proposed, UV holography lithography technique combined with phase mask of nanostructures are chosen as the main role on developing its unique applications, including GaN QPhC LEDs based high light extraction efficiency. We have established the simulation models for optimizing the structure and characteristics of GaN QPhC LEDs, and have developed the process for fabricating GaN QPhC LEDs. The proposed GaN QPhC LEDs produced the light extraction efficiency of 1.56x compared with the standard GaN LEDs. This study successfully developed a novel holography lithography technique that introduces lower-cost fabricated GaN QPhC LEDs.

Keywords: Light-emitting diodes, Quasi-photonic crystals (QPhCs), Holography lithography.



	日颏		
前言			1
研究目的			1
文獻探討			1
研究方法			3
結果與討論		{	3
結論與未來工作		1:	5
參考文獻			7

日母

前言

發光二極體(light-emitting diodes, LEDs)為一種能發光的半導體光電元件,近 年來已普遍發展成為照明光源用途。因 LEDs 具有許多優點,如壽命長、不易破 損、反應速度快與無汞等特性,使其未來更加被看重。由於目前白光 LEDs 製備 方式為藍光 LEDs 加上黃色和紅色螢光粉進而得到白光,故隨著白光 LEDs 應用 於照明領域的日益廣泛,所以對藍光 LEDs 的發光效率需求更高。

研究目的

因一般 藍光 LEDs 材料的折射率大於外部介質的折射率,所以造成藍光 LEDs 的光萃取效率都很低,而光萃取效率定義為「輻射到外界的光子數目和主 動產生的光子數目比值」。所以此研究計畫的目的為提升藍光 LEDs 的光萃取效 率,目前已發展許多提升光萃取效率的方法,例如表面蝕刻、斜切側壁、圖形化 基板、不透明電極墊下方加入電流阻障層與光子晶體(photonic crystals, PhCs)等。 過去我們實驗室研究已表明愈多重對稱性的光子晶體結構,其能夠萃取出更多侷 限於藍光 LEDs 內部的光^(1,2),如此就能提升藍光 LEDs 的光萃取效率。

過去製作多重對稱性 PhCs 結構的方法有電子束微影、奈米壓印微影與全像 術微影等,此三種微影系統各有各的的優缺點,其電子束微影的優點是可製作任 意晶格的光子晶體、且解析度可以達到奈米等級,而缺點為較慢的曝光速率,以 至於無法大量製作; 奈米壓印的優點為製程簡單,而缺點為在一開始製作所需的 模板會耗費大量時間,並且機台昂貴; 全像術微影的優點為容易製作大面積的 PhCs 結構,並且製作過程簡單和設備價格較低等,而缺點為難以在 PhCs 結構中 製作出缺陷。然而,我們考量了上述製作 PhCs 結構技術之優缺點,在此專題研 究計畫我們提出發展「利用奈米結構相位光罩搭配紫外光全像術微影系統」製作 多重對稱性 PhCs 結構技術。我們舉例說明此系統之優點,利用一般全像術微影 系統製作 8 重對稱性準晶格 PhCs (Quasi-PhCs, QPhCs)結構,傳統全像術微影方 法需要 8 次的多重曝光,而此技術利用全像微影系統加上 4 個一維週期性結構之 奈米結構相位光罩,即能將 1 道雷射光分成 4 道雷射光進行干涉,並搭配旋轉樣 品 45 度,我們只需經過 2 次曝光就可在光阻上形成 8 重對稱性之 QPhCs 結構圖 案。故此技術相較於一般過去方法,不只更省時且因為曝光次數的減少,所以得 到的奈米結構穩定性高。

文獻探討

PhCs^(3,4)為空間中不同折射率週期性分佈所形成的結構,並且按照排列方式 的不同,可分為 1D、2D 和 3D PhCs。將 2D PhCs 製作於藍光 LEDs 晶粒表面, 其 PhCs 類似於繞射光栅結構能將侷限於 LEDs 的光進一步萃取傳播至空氣中 ⁽⁵⁾。目前許多實驗研究和理論表示出 QPhCs 中同樣存在光子能隙,所謂準晶格有 著與晶格相似的長程有序原子排列,但不具有平移對稱性,由於準晶格擁有比一 般晶格(四重和六重)還高的旋轉對稱性。下面我們將簡述有關 QPhCs 之相關製作 方法和研究結果:

2005 年愛爾蘭科克大學的 J. R. Vivas 教授研究團隊⁽⁶⁾,研究 8 重準晶格週期 的光學特性和數值模擬,如圖 1 所示,其研究結果表明在 TM 極化下光子能隙 (photonic band gap, PBG)需非常低的折射率,此結果可以設計濾波器。他們也利 用 2D 時域有限差分方法提供了理論模擬證據,從而在光學的 PBG 上開闢了更多 有關低折射率材料的應用機會。



圖 1. (左)8 重準週期結構;(右) TM 極化的 PBG 圖。最小值(黑線)和最大(紅線)為歸一化的 PBG 與折射率函數的作圖。該插圖顯示出了間隙寬度,與中間 能隙比作為折射率函數。⁽⁶⁾

2006 年俄羅斯 South Ural State Univ.的 P. N. Dyachenko 教授研究團隊⁽⁷⁾,他 們發現 QPhCs 全能帶的存在。更高旋轉對稱性的 QPhCs 和普通光子晶體相比, 發現其各向同性在較低介質對比下實現一個 PBG 開口。但非週期準晶格的性質 與在普通週期性晶體的情況下相比,PBG 的大小較低。他們藉由考慮偽準晶近 似生長期去衡量準晶的優缺點來研究把週期性結構轉移成非週期性。他們製作 2、3、4 和 6 重曝光由多個曝光全息光刻得到正方形(4 重)、六邊形(6 重)、8 重 和 12 重的對稱性結構。

2012年美國物理研究所Li Wang 教授研究團隊(8),提出利用深紫外光(193nm) 的干涉光刻技術製作出 50 nm 尺度下的光栅,並研究 Kagome 晶格結構與特徵尺 寸。利用多道光束所得到的干涉圖案對於相對相位是敏感的,它們藉由使用高端 電子束光刻的光罩的透射繞射光柵做為精確定位像位的工具,如圖 2 和圖 3 所 示。發現高解析度和大面積 Kagome 晶格結構,可以應用於抑磁系統、光子晶體 和等離子體的研究。



圖 2. 光罩設計圖。

圖 3. 光罩圖像和 SEM 圖。

2015 年鄭州大學 X. H. Sun 教授研究團隊⁽⁹⁾,提出一種簡單的共光路干涉裝置,其用於製備複雜結構的亞微米尺度光子準晶製作。改變樣品旋轉角度和曝 光次數,設計多種不同旋轉對稱性的準晶結構,並給出相應的繞射模式以證明 其多重旋轉對稱性,如圖 4 所示。



圖 4. (a) 8-fold quasicrystal, (b) 10-fold quasicrystal, (c) 14-fold quasicrystal

由上面文獻得知,由於 QPhCs 擁有比一般 4 重晶格和 6 重晶格還高的旋轉對 稱性,如此應用於藍光 LEDs 表面將具有更多方向性取光,進而得到 LEDs 更高 的光萃取效率。然而這種多重對稱性的 QPhCs 製作方式不易,所以我們提出利 用紫外光全像術微影系統加上奈米結構相位光罩,使得製備多重 QPhCs 更加簡 便,且進一步應用於藍光 LEDs 表面進行光萃取效率之提升與研究。利用此奈米 結構相位光罩,我們有別於一般需要多次曝光的傳統全像術微影系統,只需數次 的曝光次數即可得到多重準晶結構,並且利用該裝置也可以任意製作複雜結構和 任意旋轉對稱性的準晶結構。

研究方法

參考了以上文獻資料後,我們提出利用奈米結構相位光罩配合紫外光全像術 微影系統進行實驗。全像術微影⁽¹⁰⁻¹¹⁾系統,利用多道光束的干涉條紋對樣品上 的光阻進行結構曝光,再經過顯影與蝕刻等步驟,即能在樣品上得到 PhCs 結構。 我們提出一道雷射光經過奈米結構相位光罩後將得到多道雷射光,進而在光阻上 形成多重對稱性之 QPhCs 繞射圖案。

在此實驗中,我們使用 Lloyd 干涉儀(Lloyd's interferometer)的概念建構出紫 外光全像術微影系統,並使用它來製作 PhCs 的架構,如圖 5 所示。Lloyd 干涉 儀主要由雷射、空間濾波器(spatial filter)、以及一個 Lloyd 面鏡所組成,如圖 5 所示。我們使用氦鎘雷射(He-Cd laser)作為曝光光源,其波長為 325 nm。而架構 中的空間濾波器則是由一個 20 倍的物鏡以及一個孔洞直徑為 8 微米的針孔所組 成。當雷射光經過空間濾波器後,我們即可得到一個均勻、無雜訊的光,接下來 經由旋轉旋轉台(Rotation stage)來控制我們想要的光子晶體週期大小;另外,利 用旋轉圓形樣品載台,我們可以藉由改變不同的曝光次數與角度,進而得到不同 晶格形狀的光子晶體。利用兩道雷射擴東光所形成的干涉條紋對樣品上的光阻作 曝光,再經過顯影、蝕刻等步驟,即能在樣品上得到 PhCs 結構。



圖 5. 紫外光全像術微影系統

結果與討論

1. PhCs 之奈米結構相位光罩製作流程與 QPhCs 結構製作

首先,我們需先製作出 1D PhCs 之奈米結構相位光罩。先將玻璃基板依序用 丙酮(ACE)、異丙醇(IPA)和純水清洗後,直接在玻璃基板上旋轉塗佈光阻。而奈 米光罩的設計上,我們進行了 3 次的不同設計與修改,分別為(a)5 個不同 2D 週 期性結構之奈米結構相位光罩,(b)4 個不同 2D 週期性結構之奈米結構相位光 罩,以及(c)4 個相同 1D 週期性結構之奈米結構相位光罩。下面將依序說明與介 紹。

(a) 5 個不同 2D 週期性結構之奈米結構相位光罩製作

利用方程式(1),以 2D 結構而言,曝光的角度(θ)不同將得到不同週期(a)大小的 PhCs 結構,如圖 6 所示。另外,其週期參數表如表 1 所示。

$$a = \frac{\lambda}{2\sin\theta} \tag{1}$$

其中 a 為 PhCs 週期大小,λ 為入射光波長和 θ 為旋轉檯旋轉角。由此可知, 當我們使用不同的旋轉角度曝光時,我們可以得到不同週期大小的 PhCs 結構。



圖 6. (a) 5 個不同 2D 週期性結構之奈米結構相位光罩, (b)區域 3 之 PhCs 電子顯微鏡圖。

區域	$a_{\Gamma X}(\mathbf{nm})$	^а _{гм} (nm)
1	936	1324
2	628	888
3	475	672
4	385	544
5	325	460

表 1. 奈米結構相位光罩中不同區域的 PhCs 結構大小

利用多個 2D PhCs 對一道擴東平行光進行繞射,進而得到不同的光束偏轉角度,根據光柵方程式(2)可以得到

 $a\sin\phi = \pm k\lambda \quad (k=0, 1, 2, 3...) \tag{2}$

其中光束繞射角度由光栅常數 a 決定,因此控制光栅常數 a 就可以得到所需的光 束偏轉角 φ,如圖 7、表 2 所示。實驗中,我們所用的是第一級(k=1) 繞射光。



圖 7. 光束偏轉角 φ 示意圖

區域	1		2		3		4		5	
	а _{гх}	а ГМ								
φ(degree)	20.3	14.2	31.2	21.5	43.2	28.9	57.6	36.7	90	45.0

表 2. 奈米結構相位光罩之區域各尺寸的偏轉角

故從表 2 的實驗結果得知我們 5 個週期在不同方向上的繞射角度,由於光束 偏轉角 φ 角度差異過大,導致雷射光通過光罩後產生的 10 道擴束光無法在同一 區域進行疊加曝光。

(b) 4 個不同 2D 週期性結構之奈米結構相位光罩製作

經過前述實驗結果,我們得到了相關經驗。由於光束偏轉角φ的限制,我們 將區域間的週期差異縮小,並且偶數個區域在實驗上比基數個區域要來的好,因 此將光罩從5個區域改為4個區域。

同理利用方程式(1),以 2D 結構而言,曝光不同角度(θ)將得到不同週期(a) 大小的方形晶格光子晶體,如圖 8 所示。另外,其週期參數表如表 3 所示。



圖 8 (a) 4 個不同 2D 週期性結構之奈米結構相位光罩, (b)區域 4 之 PhCs FESEM 圖。

表3 奈米結構相位光罩之區域尺寸

區域	a _{rx} (nm)	a _{rm} (nm)		
1	1865	2638		
2	1334	1887		
3	936	1324		
4	475	672		

此實驗結果得到其光束偏轉角 φ,如表 4 所示。雖然差異沒有前一設計光罩 大,但是通過光罩後產生的 8 道擴束光的區域疊加性不佳,如圖 9 所示。



圖 9. 光區域圖

區域	1		2		3		4	
	а _{гх}	а _{гм}	а _{гх}	а _{гм}	а _{гх}	а ГМ	а _{гх}	а ГМ
φ(degree)	9.8	7	13.2	9.8	20	14.3	43.2	28.5

表 4. 奈米結構相位光罩之區域各尺寸的偏轉角

(c) 4 個相同 1D 週期性結構之奈米結構相位光罩製作

經過上述兩次實驗結果後,最後一次的改良設計決定以4個相同週期的結構 作為奈米結構相位光罩使用,由於先前的經驗讓我們發現在週期的選擇上最好是 利用相同的繞射角度,較不會有光區域疊加上的問題產生。

利用方程式(1),以 1D 結構而言,曝光不同角度(θ)將得到不同週期(a)大小的光子晶體。實驗中,我們使用週期為 936nm 的 PhCs 製作 4 邊對稱性的奈米結構相位光罩,如圖 10 所示。



圖 10. (a) 4 邊形結構之奈米結構相位光罩, (b) 1D 光栅的 FESEM 圖。

首先我們為了確認雷射擴束光通過光罩後,究竟會形成什麼樣的光學特性, 我們首先對各個區域間進行測試,我們發現當只利用圖 10 (a)之區域 1 和區域 2 進行曝光時,兩道擴束光會疊加形成 45 度角的 1D 光栅,如圖 11 (a)所示;而光 束通過區域 3 和區域 4 亦是如此,只不過是斜向另一方向的 45 度角之 1D 光栅。 因此我們得知當雷射擴束光通過一個四邊形光罩會產生 4 道擴束光,俩俩互相垂 直的光束會疊加形成 45 度的干涉條紋,共 2 條互為垂直的干涉條紋形成 4 重對 稱 PhCs 結構,如圖 11 (b)所示。同理,我們實際上也藉由此概念實作出 8 重對 稱 QPhCs 結構,利用 4 邊形光罩先進行曝光一次,並旋轉樣品 45 度後再曝一次 即可形成 8 重對稱繞射圖形,如圖 12 所示。



圖 11. (a) 光束疊加之干涉條紋, (b) 4 重對稱之 PhCs 結構。



圖 12. 8 重 QPhCs 結構的 FESEM 圖。

2. 程式模擬結果

在理論模擬方面,我們也撰寫 Matlab 程式進行多道擴東光之繞射圖案 模擬,藉由理論模擬和實驗結果做對照,結果證實實驗和模擬的一致性。 如圖 13(a)和 13(b)是兩條干涉條紋示意圖和利用這兩條干涉條紋所形成的 4 重對稱性晶格結構;而若當擴束光通過八邊形的光罩會產生 8 道雷射擴 束光,即有四條干涉條紋產生,進而形成 8 重對稱性晶格結構,如圖 13 (c) 和 13 (d)所示。



圖 13. (a)兩道擴束光干涉示意圖, (b) Matlab 模擬之 4-fold 對稱性晶格, (c)四道擴束光干涉示意圖, (d) Matlab 模擬之 8-fold 對稱性晶格。

3. QPhCs 結構製作於藍光 LEDs 之提升光萃取效率結果

我們按照前述對奈米結構相位光罩曝光測試所得到的結果,進而將此 QPhCs 結構製作於藍光 LEDs 上。利用雷射擴東光通過奈米結構相位光罩後形成的兩道 擴東光對藍光 LEDs 基板上的光阻進行圖案製作,其圖案形成4重對稱之 PhCs 結構,如圖 14 (a) 所示;而利用此光罩先進行曝光一次,並旋轉樣品 45 度後再 曝一次即可形成8 重對稱之 QPhCs 結構圖形,如圖 14 (b)。我們也發現實驗結果 與理論模擬相符合,故我們可以利用理論模擬方式得到更多對稱性之 QPhCs 結 構。



圖 14. 製作於藍光 LEDs 之 PhCs 結構, (a) 4 重對稱之 PhCs, 和(b) 8 重對稱之 OPhCs。

我們製作了4重對稱 PhCs 和8重對稱 QPhCs 之藍光 LEDs,並與一般平面 藍光 LEDs 作光萃取效率之量測比較,也觀察他們的發光情形。我們是使用圖案 化基板的藍光 LEDs,所以我們將觀測焦平面聚焦於圖案化基板上,點亮一般平 面藍光 LEDs 後,從顯微鏡上可以清清楚楚地看到基板上的圖案,如圖 15(a)所 示。而4重對稱 PhCs 之藍光 LEDs,其相較於一般平面藍光 LEDs 發現光萃取強 度增強,這是因為取光方向增加了,如圖 15(b);8 重對稱 QPhCs 之藍光 LEDs, 其就更明顯的可以發現,幾乎看不見基板上的圖案且光強度提升更多,如圖 15(c) 所示。因此我們可以從中得知,隨著對稱性結構的增加,取光方向也隨之增加, 光強度的提升也是明顯可見,此實驗結果與過去研究結果相符合^(1,2,5)。



圖 15. 不同奈米結構製作於藍光 LEDs 之光萃取圖, (a)一般平面, (b) 4 重對稱之 PhCs, (c) 8 重對稱之 QPhCs。

我們也量測了所有樣品之光萃取效率比較結果,利用量測系統去研究一般平 面、4 重對稱之 PhCs 和 8 重對稱之 QPhCs 的光強度,進而從中了解光萃取效率 是否提升。而從我們的量測結果,如圖 16 所示。可以清楚的看出 4 重對稱之藍 光 PhC LEDs 所量測出的光強度比一般平面 LEDs 提升了 1.27 倍;而 8 重對稱之 藍光 QPhC LEDs 測量出的光強度和一般平面 LEDs 相比提升了 1.56 倍。此研究 結果證實了我們將高對稱性結構製作於藍光 LEDs 上確實提升了光萃取效率,且 愈多重對稱性其光萃取效率愈高。



圖 16. 不同奈米結構製作於藍光 LEDs 之光強度量測圖

結論與未來工作

為了使藍光 LEDs 的光萃取效率能進一步提升,本專題研究計畫利用紫外光 全像術微影系統加上奈米結構相位光罩形成多道擴束雷射光,並在光阻上形成多 重對稱性之 QPhCs 繞射圖案。我們將此 QPhCs 繞射圖案製作於藍光 LEDs 晶粒 表面上,證實比一般平面藍光 LEDs 提升了 1.56 倍的光萃取效率。

由於此計畫執行只有 8 個月,未來我們將持續執行此計畫,將特殊的多重對 稱性繞射圖案製作於藍光 LEDs 晶粒表面上更進一步提升其光萃取效率,並進行 其結果比較。我們也提出未來可以利用 8 邊形奈米結構相位光罩,如圖 14 所示, 可做出更多不同變化的圖形,藉由旋轉樣品角度進而曝出特殊繞射圖形。如表五 所示。最後我們也預期此研究計畫之實驗結果,進行 1 篇國外論文期刊發表,並 參加國內相關研討會。



圖 14.8 邊形之奈米結構相位光罩

表五. 旋轉樣品不同曝光角度之模擬圖



參考文獻

- [1] C. E. Lee, C. F. Lai, Y. C. Lee, H. C. Kuo, T. C. Lu, and S. C. Wang, "Nitride-Based Thin-Film Light-Emitting Diodes With Photonic Quasi-Crystal Surface," IEEE Photon. Tech. Lett., vol.21, pp.331, 2009-03.
- [2] C. F. Lai , J. Y. Chi, H. C. Kuo*, C. H. Chao, H. T. Hsueh, J.-F. T. Wang and W. Y. Yeh, "Anisotropy of light extraction from GaN two-dimensional photonic crystal light-emitting diodes, "Optics Express, vol.16, pp.7285, 2008-03.
- [3] E. Yablonvitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics," *Phy. Rev. Lett.*, vol. 58, pp. 2059-2062, 1987.
- [4] S. John, "Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 58, pp. 2486-2489, 1987.
- [5] C. F. Lai, J. Y. Chi, H. C. Kuo*, C. H. Chao, H. T. Hsueh, J.-F. T. Wang and W. Y. Yeh, "Anisotropy of light extraction from GaN two-dimensional photonic crystal light-emitting diodes," *Optics Express*, vol. 16, pp. 7285, 2008.
- [6] J. R. Vivas, D. N. Chigrin, A. V. Lavrinenko, and C. M. S. Torres, "Resonant add-drop filter based on a photonic quasicrystal," *Optics Express*, vol. 13, pp. 826-835, 2005.
- [7] <u>P. N. Dyachenko</u>, and <u>Y. V. Miklyaev</u>, "Band structure calculations of 2D photonic pseudo quasicrystals obtainable by holographic lithography," SPIE, vol. 6182, 61822I, 2006.
- [8] L.Wang, B. Terhalle, Vitaliy A. Guzenko, Alan Farhan, Mohamad Hojeij, and Yasin Ekinci, "Generation of high-resolution kagome lattice structures using extreme ultraviolet interference lithography," APPLIED PHYSICS LETTERS 101, 093104 (2012).
- [9] X. H. Sun , W. Y. Liu, S. Wang, W.Y. Li, W. Liu, "Fabrication of multi-structure 2D photonic quasicrystals by using single-prism common-path interferometry," Acta Photonica Sinica, 2015, 44(12): 1216001.
- [10] K. B. Choi, S. J. Shin, T. H. Park, H. J. Lee, J. H. Hwang, J. H. Park, B. Y. Hwang, Y. W. Park, and B. K. Ju, "Highly improved light extraction with a reduced spectrum distortion of organic light-emitting diodes composed by the sub-visible wavelength nano-scale periodic (~250 nm) structure and micro-lens array," *Organic Electronics*, vol. 15, pp. 111-117, 2014.
- [11] D. Xu, K. P. Chen, K. Ohlinger, and Y. K. Lin, "Nanoimprinting lithography of a two-layer phase mask for three-dimensional photonic structure holographic fabrications via single exposure," *Nanotechnology*, vol.22, 035303, 2011.