

2차원 광자 결정을 이용한 $In_xGa_{1-x}N/In_yGa_{1-y}N$ 녹색 발광 다이오드의 음극선 발광 효율 증대

최의섭, H. P. T. Nguyen, H. M. Doan, 김상인, 임한조, 이재진
아주대학교 전자공학과

Enhanced cathode luminescence in $In_xGa_{1-x}N/In_yGa_{1-y}N$ green light emitting diode structure using two-dimensional photonic crystal

E. S. Choi, H. P. T. Nguyen, H. M. Doan, S. Kim, H. Lim, and J. J. Lee
Ajou University, Suwon 443-749, Korea

Abstract - $In_xGa_{1-x}N/In_yGa_{1-y}N$ 다중 양자우물 녹색 발광 다이오드에 2차원 광자 결정을 이용하여 음극선 발광의 향상을 관찰 하였다. 정사각형 배열의 2차원 광자 결정의 주기와 격자 상수는 200/500 nm 이고 전자빔 리소그래피로 광자결정 패턴을 제작한 후, 플라즈마 건식 식각법으로 패턴을 구현하였다. 식각 시간의 차이를 둔 구현된 패턴의 홀 깊이는, 각각 ~69 nm, ~99 nm, ~173 nm 이었다. 전계 방사 주사 현미경 측정 결과, 형성된 홀은 깊이 잘린 역전된 원뿔 모양으로 식각 되었다. 식각 된 홀의 깊이에 따라 광자 결정이 있는 부분이 없는 부분보다 최대 ~30배 많은 광자가 검출됨을 확인 하였다.

1. 서 론

발광 다이오드는 높은 가격에도 불구하고 반영구적인 수명과 적은 소비전력, 또한 기존의 광원과 달리 수온을 사용하지 않기 때문에 친환경 소자로 많은 각광을 받고 있다. 특히 적색과 청색 발광 다이오드의 휘도를 향상시키는 연구가 많은 성과를 거두어 전광판, 모바일 기기 등에 응용되고 있다. 또한 자체 발광 기능이 없는 액정 디스플레이의 백라이트 유닛으로 각광받고 있다. 시장 규모가 큰 일반 조명 시장에서 발광 다이오드가 차지하는 비중을 높여려고 고휘도 백색 발광 다이오드 개발이 필수적인 현실이다. 백색 발광 다이오드 제작 방법에는 크게 세 가지가 있다. 청색 적색 녹색 발광 다이오드의 조합, 청색 발광 다이오드와 황색 형광체 조합 그리고 자외선 발광 다이오드와 적색 청색 녹색 형광체의 조합법이다.[1] 이중 적색 청색 녹색 발광 다이오드 조합이 색 재현성 측면에 있어 고효율 백색 발광 다이오드 제작에 적합한 선택이다. 그러나 녹색 발광 다이오드는 적색과 청색의 경우에 비해 휘도가 낮다. 이는 크게 내부 양자 효율에 의한 원인과 외부 광 추출 효율에 의한 것으로 나눌 수 있다. 녹색 파장 ($\lambda \sim 530$ nm)을 방출하는 양자 우물을 제작하기 위해서는 양자우물 구성 성분중 하나인 인듐의 비율을 높여야 한다. 그러나 현재까지는 높은 인듐의 비율로 인한 문제에 대한 해결책은 밝혀지지 않은 실정이다. 외부 광 추출 효율이 낮은 이유는 질화 갈륨계 물질의 높은 반사 계수로 인하여 양자 우물에서 발생된 광자가 전반사 되어 발광 다이오드 외부로 빠져 나가는 숫자가 줄어들기 때문이다. 외부 광 추출 효율을 높이기 위한 방법으로는 광자결정을 이용한 방법[2-4], 레이저 리프트오프를 이용한 방법[5], 투명 기판을 사용하는 방법[6] 그리고 깊이 잘린 역전된 피라미드 모양의 발광 다이오드 등이 있다.[7] 최근 청색과 자외선 발광 다이오드에서는 광자 결정을 사용하여 광 추출 효율을 향상 시킨 연구가 성과를 거두고 있으나,[2-4,8] 녹색 발광 다이오드에 광자 결정을 제작한 경우는 거의 없다. 따라서 본 논문에서는 광자 결정을 이용하여 녹색 발광 다이오드의 외부 광 추출 효율을 높이는 연구를 수행하였다. 광자 결정을 제작하는 방법에는 나노 임프린트를 이용한 방법[9], 레이저 홀로그래피를 이용한 방법[10], 그리고 전자선 리소그래피를 이용하는 방법 등이 있는데 본 논문에서 사용된 샘플은 전자선 리소그래피를 이용하였다. 광자 결정은 서로 다른 유전 상수를 가지는 물질들의 주기적인 배열이라 할 수 있다. 반도체 결정의 주기성이 전자의 이동에 영향을 미치는 것처럼 주기적인 서로 다른 절연 상수를 가지는 물질의 배열을 통해, 광자의 이동에 영향을 미치는 원리이다. 광자 결정에 의해 광자 띠틈격이 형성된다. 이 띠틈격 범위에 속하는 주파수를 가진 광자는 수평 방향으로의 전파가 불가능하게 되어 발광 다이오드의 수직 방향뿐만 아니라 전파하게 되어 외부 광 추출 효율을 향상 시킨다. 녹색 발광 다이오드 웨이퍼에 전자선 노광기와 플라즈마 건식 식각을 통하여 최대 ~30배의 음극선 발광 향상을 이루었다.

2. 본 론

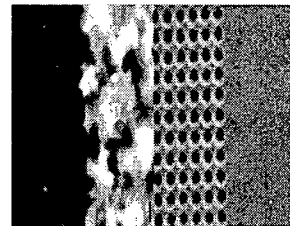
2.1 실험

본 논문에서 사용된 녹색 발광 다이오드 웨이퍼는 저압 유기 금속 화학 기상 증착 법으로 사파이어 기판 위에 성장되었다. TMGa (Trimethylgallium), TMIn (Trimethylindium), TMAI (Trimethylaluminum) 그리고 NH_3 (Ammonia)가 각각 Ga, In, Al, N 소스로 사용되었다. 불순물로는 CP_2Mg (Bicyclopentadienyl magnesium)와 Si_2H_6 (Disilane)를 각각 p 와 n 형 불순물로 사용하였다. 질화 갈륨 기반의 이중 이종구조로 구성되어 있으며, 기판을 포함한 전체 웨이퍼의 두께는 5.232 μm 이다. 사파이어 기판으로부터 차례대로, 도핑 되지 않은 질화 갈륨 완충 층이 3 μm , Si이 도핑된 n형 질화 갈륨 층이 2 μm , 6개의 $In_{0.25}Ga_{0.75}N/In_{0.15}Ga_{0.85}N$ 다중 양자

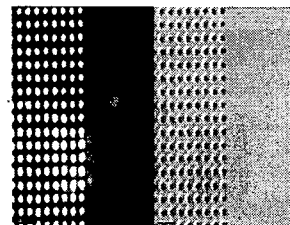
우물이 각각 2/15 nm 가 성장되었다. 양자우물 위에는 Mg가 도핑된 p형 AlGaIn 클래드 층이 30 nm, p형 질화 갈륨 층이 100 nm 성장되었다. 유기 금속 화학 기상 증착 법으로 에피택셜 하게 성장한 웨이퍼의 특성을 평가 하기 위하여 광루미네선스, 고해상도 엑스선 회절 측정 그리고 표면 저항을 측정 하였다. 성장된 녹색 발광 다이오드 웨이퍼에 전자선 리지스트를 200 nm 코팅한 후, 정사각형 배열의 원기둥 모양의 패턴을 지름/주기 = 200/500 nm로 전자선 리소그래피를 이용하여 제작하였다. 식각되는 깊이에 따른 음극선 발광 강도의 차이를 측정하기 위하여, 세 가지 다른 깊이를 가진 패턴을 플라즈마 건식 식각 기를 이용하여 제작 하였다. 샘플 1, 2, 3은 다음과 같다. 샘플 1의 식각된 깊이는 173 nm, 패턴 면적 1 $\mu m \times 5000 \mu m$. 샘플 2의 식각된 깊이는 99 nm 패턴 면적 1 $\mu m \times 5000 \mu m$. 샘플 3의 식각된 깊이는 63 nm, 패턴의 면적이 7 mm * 7 mm 이다. 샘플은 1, 2, 3의 순서로 제작 하였으며 제작후 전계방사 주사 현미경으로 그 형태를 관찰하였다.

2.2 결과 및 토의

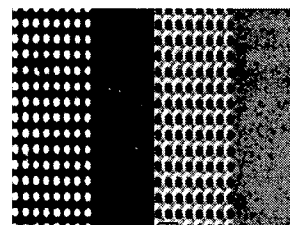
샘플 1, 2, 3의 형태를 분석하기 위하여 전계 방사 주사 현미경을 사용하여 측정을 하였다. 전자선 노광기를 이용하여 제작한 패턴과 실제 식각을 한 후 홀 패턴은 차이가 있었다. 전계방사 주사 현미경을 이용한 단면 측정 결과 홀의 모양은 깊이 잘린 역전된 원뿔 모양 이었다. 또 홀의 깊이가 깊어질수록 직경은 ~200 nm에서 ~100 nm 로 감소하였다. 이는 전자선 리지스트의 두께가 얇은 것이 원인이다. 다른 실험에서 전자선 리지스트를 본 실험의 두 배(~400 nm)의 두께로 코팅을 한 경우 단면 측정 시 식각된 홀의 모양이 깊이 잘린 역전된 원뿔 모양이 되는 것을 막을 수 있었다. 그림 1, 2, 3 은 샘플 1, 2, 3의 전계 방사 주사 현미경과, 음극선 발광 정도를 측정 한 사진이다. 각 그림의 오른쪽 부분은 전계방사 주사현미경 측정 결과, 왼쪽은 음극선 발광 측정 결과이다.



<그림 1> 샘플 1의 음극선 발광측정(좌), 전계방사 주사현미경 측정(우)



<그림 2> 샘플 2의 음극선 발광측정(좌), 전계방사 주사현미경 측정(우)

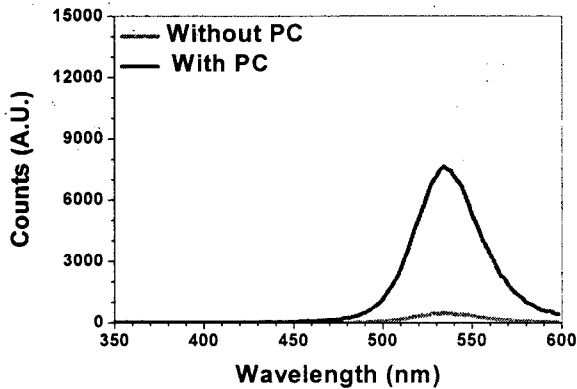


<그림 3> 샘플 3의 음극선 발광측정(좌), 전계방사 주사현미경 측정(우)

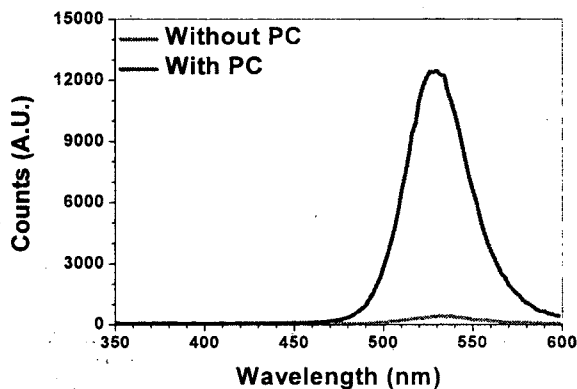
음극선 발광 측정은 샘플의 띠간격보다 높은 에너지를 가지는 전자들 시편에 충돌시켜 방출되는 빛의 파장과 광자의 수를 측정 하는 메커니즘을 가진다. 따라서 광루미네선스에서 사용하는 레이저 보다 빛의 크기가 매우 작으므로 빛이 방출되는 위치를 확인 할 수 있다. 식각된 패턴이 끝이 잘린 역전된 원뿔 모양으로서, 형성된 홀의 사면 부분에서 빛이 방출됨을 볼 수 있다.

샘플 1의 음극선 발광 측정 결과, 광자 결정 패턴이 있는 곳과 없는 곳의 빛의 강도 차이가 뚜렷함을 볼 수 있었다. 끝이 잘린 역전된 원뿔 모양의 식각된 홀의 최대 깊이는 173 nm이다. 광자 결정이 없는 부분에서는 거의 빛이 검출되지 않았다. 이는 p형 질화 갈륨 층(100 nm) 과 바로 아래의 p형 알루미늄 질화 갈륨 층(30 nm)의 두께를 고려하였을 때 양자우물, 즉 활성 층에 손상이 간 것으로 해석된다. 또한 양자 우물에서 방출되는 $\lambda \sim 535$ nm 파장대의 빛이 아주 약하여 상대적으로 강도가 약한 질화 갈륨 층에서 방출되는 $\lambda \sim 370$ nm 파장대의 빛 또한 검출되었다.

샘플 2와 3은 식각 깊이를 각각 99 nm 와 63 nm로 조정하여 양자우물, 즉 활성 층에 손상이 가지 않도록 하여 내부 양자 효율의 열화를 방지하였다. 그림 4와 그림 5는 샘플 2와 샘플 3에서 방출되는 음극선 발광 측정 결과이다. 그림 4.로부터 알 수 있듯이 양자 우물이 손상되지 않았을 경우, 광자 결정 패턴이 있는 부분과 없는 부분의 음극선 발광의 강도는 광자 결정이 없는 부분 보다 ~ 16 배 강한 $\lambda \sim 535$ nm 빛을 방출함을 알 수 있다. 그림 5 는 광자 결정 패턴이 있는 부분에서 없는 부분보다 ~ 30 배 강한 $\lambda \sim 535$ nm 빛을 방출함을 알 수 있다. 그림 2, 3, 4, 5를 고려했을 때 식각된 패턴의 형태와 측정되는 빛의 강도에 연관이 있음을 알 수 있다.



<그림 4.> 샘플 2의 음극선 발광 스펙트럼 측정 결과



<그림 5.> 샘플 3의 음극선 발광 스펙트럼 측정 결과

광자 결정이 있는 부분과 없는 부분에서 방출되는 빛의 강도의 차이를 고려했을 때, 광자 결정이 정확히 조정되었음을 알 수 있다. 따라서, 광자 띠간격이 형성 되었고, 활성 층에서 생성된 빛은 광자 결정에 의해 수평 방향으로 방출이 되지 못하고 p형 질화 갈륨 층에 수직인 방향으로 방출되었다는 사실을 알 수 있다. 그림 1, 2, 3을 관찰하였을 때, 광자 결정을 구성하는 홀들의 식각 전 형태는 같아도 식각 공정을 거친 후 그 형태는 다를 수 있다는 것을 알 수 있다. 또한 식각하는 패턴의 면적, 그리고 식각하는 깊이에 따라서도 그 형태가 다를 수 있음을 보여준다. 이는 광자 결정을 제작하는데 사용된 양성 전자선 리치스트의 영향으로 보인다. 전자 빔에 노출된 부분이 현상 과정을 거치며 그 형태가 왜곡될 수 있기 때문이다.

3. 결 론

6개의 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ 다중 양자 우물 활성층 위에 저압 금속 유기 화학 기상 증착 법으로 p형 질화 갈륨 박막을 성장 하였다. Mg를 도핑한 p형 질화 갈륨 박막에 2차원 광자 결정 패턴을 제작하여 측정한 결과, 서로 다른 식각 깊이에 따른 음극선 발광 정도를 측정하여 최대 30배의 강한 빛이 광자 결정을 통하여 방출됨을 확인 하였다. 또한 음극선 발광 측정을 통하여, 광자 결정을 구성하는 각각의 홀에서 빛이 방출되는 위치를 확인할 수 있었다. 본 연구는 고효율 녹색 발광 다이오드의 제작이 가능함을 보여 준다. 향후, 고효율 녹색 발광 다이오드를 이용하여 TFT-LCD의 백라이트 유닛과 일반 조명 시장에서 상용화될 수 있는 고효율 백색 발광 다이오드 개발 등의 다양한 응용이 가능함을 보여준다.

[참 고 문 헌]

- [1] Daniel A. Steigerwald, Jerome C. Bhat, Dave Collins, Robert M. Fletcher, Mari Ochiai Holcomb, Michael J. Ludowise, Member, IEEE, Paul S. Martin and Serge L. Rudaz, "Illumination with solid state lighting technology", IEEE J. Select. Topics Quantum Electron, vol 8, no 2, 2002.
- [2] T. N. Oder, K. H. Kim, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, "III-nitride blue and ultraviolet photonic crystal light emitting diodes", Appl. Phys. Lett, vol 184, 466, 2004
- [3] T. N. Oder, J. Shakya, J. Y. Lin and H. X. Jiang, "III-nitride photonic crystals", Appl. Phys. Lett, vol 83, 1231, 2003
- [4] Lu Chen and Arto V. Nurmiko, "Fabrication and performance of efficient blue light emitting III-nitride photonic crystals", Appl. Phys. Lett, vol 85, 3663, 2004
- [5] Chen-Fu Chu, Fang-I Lai, Jung-Tang Chu, Chang-Chin Yu, Chia-Feng Liu, Hao-Chung Luo, and S. C. Wang, "Study of GaN light-emitting diodes fabricated by laser lift-off technique", J. Appl. Phys, vol 95, 3916, 2004
- [6] F. A. Kish, F. M. Steranka, D. C. DeFevere, D. A. Vanderwater, K. G. Park, C. P. Kuo, T. D. Osentowski, M. J. Peanasky, J. G. Yu, R. M. Fletcher, D. A. Steigerwald, and M. G. Craford, "Very high-efficiency semiconductor wafer-bonded transparent-substrate $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_0.5\text{In}_{0.5}\text{P}/\text{GaP}$ light-emitting diodes", Appl. Phys. Lett, vol 64, 2839, 1994
- [7] M. R. Krames, M. Ochiai-Holcomb, G. E. Hoffer, C. Carter-Coman, E. I. Chen, I.-H. Tan, P. Grillo, N. F. Gardner, H. C. Chui, J.-W. Huang, S. A. Stockman, F. A. Kish, and M. G. Craford, "High-power truncated-inverted-pyramid $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_0.5\text{In}_{0.5}\text{P}/\text{GaP}$ light-emitting diodes exhibiting >50% external quantum efficiency", Appl. Phys Lett, vol 75, 2365, 1999
- [8] J. Shakya, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, "Time-resolved electroluminescence studies of III-nitride ultraviolet photonic-crystal light-emitting diodes", Appl. Phys Lett, vol 85, 2104, 2004
- [9] Kyeong-Jae Byeon, Seon-Yong Hwang, and Heon Lee, "Fabrication of two-dimensional photonic crystal patterns on GaN-based light-emitting diodes using thermally curable monomer-based nanoimprint lithography", Appl. Phys Lett, vol 91, 091106, 2007
- [10] Dong-Ho Kim, Chi-O Cho, Yeong-Geun Roh, Heonsu Jeon, Yoon Soo Park, Won Jun Choi, Jin Seo Lim, Cheolsoo Sone, Yongjo Park, Won Jun Choi, and Q-Han Park, "Enhanced light extraction from GaN-based light-emitting diodes with holographically generated two-dimensional photonic crystal patterns", Appl. Phys Lett, vol 87, 203508, 2005