

## 1. 서론

21세기 정보화 사회의 눈부신 발전과 급격한 변화 속에서 폭발적인 디지털 멀티미디어 콘텐츠를 수용하기 위해 고효율·고연색지수를 갖는 조명용 광원 기술 및 높은 색재현성, 높은 투과성, 빠른 응답속도 등의 특성을 가지는 paradigm-shifted display(신개념·고성능 디스플레이) 기술에 대한 관심이 높아지고 있다. 특히, 빛을 내는 반도체 소자인 발광다이오드(light-emitting diode)에 대한 연구가 최근 친환경 녹색성장의 핵심 산업으로 떠오르면서 최고의 성장 산업으로 각광받고 있다. 발광다이오드는 기존의 다른 광원에 비하여 낮은 전력으로도 높은 광효율을 낼 수 있는 고효율 광원이다. 또한 cold cathode fluorescent lamp(CFL) 보다 높은 색재현성 및 빠른 응답 속도, 저전력·고효율의 장점으로 인해 세

가지므로, 질화인듐(InN/0.7eV)과 질화알루미늄(AlN/6.2eV)과의 alloy를 통해 자외선, 가시광선, 적외선 파장영역까지 해당하는 빛을 방출할 수 있다. 이미 질화물계 발광다이오드는 실생활의 많은 분야에 상용화될만큼 우수한 광특성을 보이지만 조명용 고효율 발광다이오드의 개발을 위해선 추가적인 광출력 개선이 요구된다. 일반적으로 발광다이오드의 광출력은 소자의 내부양자효율 및 광추출효율에 의해 결정된다. 질화물계 발광다이오드의 내부양자효율을 저하시키는 주된 원인은 높은 결합 밀도와 quantum confined Stark effect(QCSE)가 있다[1-3]. 일반적으로 질화물계 발광다이오드가 기판으로 사용된다. 하지만, 그림 1(a)에서처럼 기판과 질화물 박막간의 열팽창 계수와 격자상수 차이로 인하여 질화물 박막은  $10^8 \sim 10^{10}/\text{cm}^2$ 의 결합밀도를 가진다[1]. 이렇게 발생된 결합은 carrier의 재결합 속도

# 특집 | SPP

## 플라즈몬의 발광다이오드 응용

조주영, 박성주 \*

계 각국에서 기술 개발 경쟁이 한창이다. 대표적인 산업 전략관련 학회인 “Strategies in Light”에서는 ‘고휘도 발광다이오드의 세계 시장’이라는 주제의 발표를 통해 향후 발광다이오드가 반도체 메모리와 liquid crystal display(LCD) 소재 및 부품 시장을 능가할 것으로 전망했다. 이처럼 발광다이오드에 대한 연구는 전세계적으로 가장 주목을 받고 있으며 조명, 휴대폰, 자동차, 전광판 등 이미 우리 실생활의 많은 부분에서 상용화되어있다.

현재 상용화 되어 있는 발광다이오드는 질화갈륨(GaN)계 물질로 구성되어있다. 질화갈륨은 direct 밴드갭(band-gap: 띠허격)인 동시에 넓은 밴드갭(3.4eV)을

를 감소시키고, 전류의 leakage path로 작용하여 발광다이오드의 효율을 낮춘다. 내부양자효율(internal quantum efficiency)을 저하시키는 또 다른 원인인 QCSE의 경우는 질화물계 발광다이오드의 활성층을 구성하는 대표적인 물질인 InGaN 기반의 다중양자우물 구조(multiple quantum wells, MQWs)에서 질화인듐과 질화갈륨의 격자상수 차이 때문에 발생하는 polarization-induced field로 인해 전자와 정공이 공간적으로 분리되는 현상으로 carrier들의 재결합 효율을 저하시키고, 발광 파장을 red-shift 시키는 등 여러 가지 문제점을 야기시킨다[2,3].(그림 1(b)) 그러므로 고효율

\* 광주과학기술원 신소재공학과

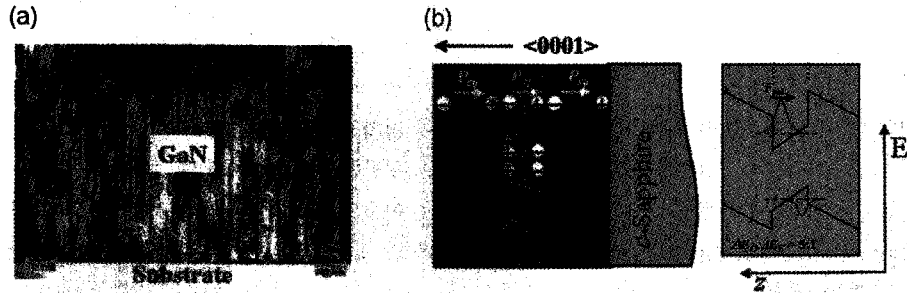


그림 1. (a) 사파이어 기판에 성장된 질화갈륨 박막의 결함 이미지. (b) 질화갈륨 발광다이오드에 발생하는 Polarization-induced field 및 QCSE에 의해 구부러진 에너지 밴드 이미지.

발광다이오드 개발을 위해서는 이와 같은 문제점들의 해결을 통한 발광다이오드의 내부양자효율 개선이 필수적이다. 최근 발광다이오드의 내부양자효율 개선을 위해서 위에 언급한 문제점을 우회하고자 하는 다양한 연구가 진행되고 있는데, 그 대표적인 연구로 금속의 표면플라즈몬 상호결합을 발광다이오드에 적용하는 방법이 있다. 이 글에서 필자는 발광다이오드에 적용되는 표면플라즈몬 개념과 최근에 이루어진 발광다이오드 분야로의 응용 예를 소개하고자 한다.

## 2. 표면플라즈몬을 통한 발광다이오드의 내부양자효율 향상 및 광특성 개선

표면플라즈몬(surface plasmons, SPs)은 표면플라즈몬 폴라리톤(surface plasmon polaritons, SPPs)이라고도 불린다. 표면플라즈몬은 일반적으로 음의 유전 함수(dielectric function,  $\epsilon' < 0$ )를 갖는 금속과 양( $\epsilon' > 0$ )의 그것을 갖는 매체의 계면을 따라 전파하는 전도대(conduction band) 전자들의 집단적인 진동(collective oscillation) 현상을 말한다.(그림 2) 특히, 외부에서 입사되는 빛과 같은 전자기파와의 상호작용의 결과 여기(excitation)되어 입사하는 빛보다 증강된 크기를 갖고 계면에서 수직 방향으로 멀어질수록 지수적으로 감소하는 소멸파(evanescent wave)의 성질과 형태를 갖게 된다. 즉, 표면플라즈몬 상호결합(surface plasmon resonance, SPR) 현상은 빛과 나노 크기의 금속(noble metal) 간의 상호작용의 결과로써 야기 되고 관찰되는 독특한 현상이라고 정의할 수 있다.

이와 같은 표면플라즈몬 상호결합 현상은 크게 두 가지

로 분류되는데 하나는 나노사이즈 두께의 매끄러운 평판 형태의 귀금속과 유전체 계면에서 관찰되는 전파형 플라즈몬(propagating plasmons)과, 다른 하나는 나노사이즈 크기의 금속 나노입자나 나노소재 등에서 관찰되는 국부적 표면플라즈몬(localized surface plasmon, LSP) 현상이다.

이와 같은 표면플라즈몬의 제어 및 응용기술을 일반적으로 "Plasmonics"라 정의하고 나노기술과 더불어 최근 학계의 많은 관심을 받고 있는 연구분야이다. 특히, 발광다이오드 분야에 본 개념이 적용되어 고효율 발광다이오드 개발을 위한 많은 연구가 진행되고 있다.

일반적으로 상용화되어 있는 질화갈륨계 발광다이오드의 발광 메커니즘은 그림 3에서처럼 활성층인 다중양자우물구조 내부에 p형 전극을 통해 주입된 정공과 n형 전극을 통해 주입된 전자가 재결합하면서 활성층의 밴드갭에 해당하는 빛을 발광하게 되는데 이것을 발광 재결합(radiative recombination)이라 정의한다. 하지만, 박막 내 존재하는 전위와 같은 결함들에 의해 carrier들은 비발광 재결합(non-radiative recombination)을 하게 되고, 발광 재결합과 달리 열과 같은 방법으로 에너지를 방출하게 된다. 이와 같이 carrier들의 비발광 재결합은 발광다이오드의 효율을 줄이므로 광출력을 감소시키는 주요 원인으로 작용한다. 이와 같은 이유로 발광다이오드

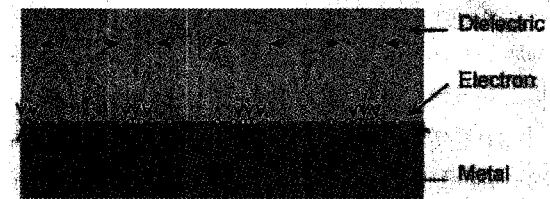


그림 2. 금속/유전체 계면을 따라 전파하는 표면플라즈몬 모식도.

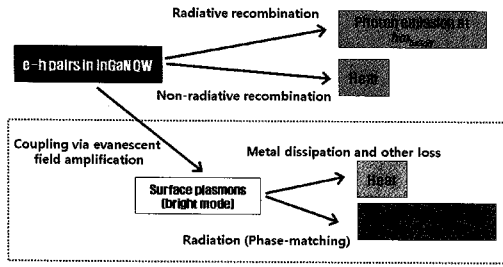
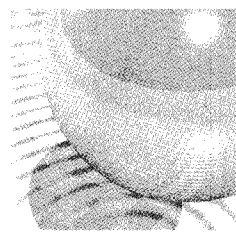


그림 3. 표면플라즈몬 상호결합이 적용된 발광다이오드의 발광 메커니즘.

가 이미 상용화가 되었음에도 불구하고 아직 내부양자효율의 개선이 요구되고 있으며, 고출력 발광다이오드 개발을 위해서는 carrier들의 재결합 효율 개선을 통한 내부양자효율의 개선에 대한 연구가 요구되고 있다. 최근, 표면플라즈몬 상호결합을 통해 발광다이오드의 내부양자효율 및 광출력을 향상시키는 연구가 활발히 이뤄지고 있다. 표면플라즈몬과의 상호결합 메커니즘이 발광다이오드에 적용이 되면 그림 3에서처럼 일반적인 발광다이오드의 발광, 비발광 재결합 이외에 표면플라즈몬 상호결합에 의한 독립적인 재결합 프로세스가 발생하게 된다. 즉, 발광다이오드의 활성층에서 발생하는 빛과 금속의 표면플라즈몬에 의한 상호결합 및 에너지 전이를 통해 carrier들의 재결합을 위한 특별한 채널이 형성되고, 이를 통해 밴드갭에 해당되는 빛을 발광하게 된다.

이와 같은 발광 메커니즘은 Fermi's golden rule을 통해 설명할 수 있다.

$$\Gamma_{SE} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho \left| \langle f | \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} | i \rangle \right|^2 \quad (1)$$

$\rho$  : Photon density of states  
 $\langle f | \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} | i \rangle$  : Matrix element for the interaction  
 $\mathbf{d}$  : dipole moment,  $\mathbf{E}$  : local electric field

발광다이오드의 활성층 내부에 엑시톤이 금속의 표면플라즈몬의 electric field와 상호결합을 하고, 이를 통해 발광다이오드의 spontaneous emission rate가 증가하게 된다[4]. 발광다이오드 spontaneous emission rate의 증가는 내부양자효율을 개선시키고 그 결과 광출력을 향상시키는 원리다. 특히, 표면플라즈몬 상호결합을 통한 재결합 프로세스는 fs(femto-second) 단위의 시간상수를 가지게 되는데 일반적으로 ns(nano-second)의 시간상수를 가지는 발광다이오드의 발광, 비발광 재결합 메커니즘 보다 매우 빠른 속도를 가진다. 결론적으로 표면

플라즈몬 상호결합 프로세스가 발광다이오드에 적용되었을 때, 아래의 식에서 나타내는 것처럼 발광다이오드의 재결합 메커니즘은 표면플라즈몬 상호결합에 의한 재결합 프로세스에 의해 지배를 받게 되고, 그 결과 앞에서 설명한 것처럼 발광다이오드의 spontaneous emission rate 증가 및 내부양자효율 개선을 가능케 한다[4-6].

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{nr}} + \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{sp}} \approx \frac{1}{\tau_{sp}} \quad (2)$$

$$\frac{1}{\tau} \approx \frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{2\pi}{\hbar} \left[ \frac{1}{3} d^2 |aE(a)|^2 \right] 2\pi k \frac{A}{(2\pi)^2} \frac{dk}{d(\hbar\omega)} \quad (3)$$

$\tau_r$  : radiative lifetime

$\tau_{nr}$  : non-radiative lifetime

$\tau_{sp}$  : lifetime of surface plasmon

$E(a)$  : local electric field from surface plasmon

하지만, 표면플라즈몬 상호결합 현상이 일어나기 위해서는 몇가지 조건을 만족시켜야만 한다. 우선적으로 금속의 표면플라즈몬 파수벡터(wave vector) 또는 모멘텀(momentum,  $k_{sp}$ )이 입사된 빛의 계면 성분의 파수벡터 또는 모멘텀과 일치되어야 한다. 표면플라즈몬 파수벡터는 다음과 같은 식으로 얻어진다[7,8].

$$\hbar k_x = \frac{\hbar\omega}{c} \left[ \frac{\epsilon_m \cdot \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d} \right]^{1/2} \quad (4)$$

$\hbar$  : Planck constant

$\epsilon_m$  : Real part of the dielectric functions for metal

$\epsilon_d$  : Real part of the dielectric functions for semiconductor

위의 식에서처럼 표면플라즈몬 파수벡터는 금속 및 반도체 물질의 종류에 의해 결정된다. 이렇게 얻어진 파수벡터가 발광다이오드의 활성층에서 발생하는 빛의 파수벡터와 일치하였을 때 표면플라즈몬 상호결합에 의해 입사된 빛보다 증강된 빛을 얻을 수 있다. 위와 같은 조건에 대한 대표적인 실험결과로 금속의 종류에 따라 표면플라즈몬 공명에 의한 광특성 증가폭이 다른데, 그 원인은 금속의 종류에 따라 서로 다른 표면플라즈몬 파수벡터 및 모멘텀을 가지기 때문이다[6]. 표면플라즈몬 공명을 위한 두 번째 조건으로는 금속층과 활성층간의 거리이다. 앞서 설명한 것처럼 표면플라즈몬은 계면에서 수직 방향으로 멀어질수록 지수적으로 감소하는 소멸파의 성질과 형태를 갖고 있다. 즉, 빛이 발생하는 활성층과 표면플라즈몬을 위한 금속층과의 거리가 멀어질수록 입사된 빛의 증가폭은 지수적으로 감소하게 된다. 일반적으로 표면플라즈몬 상호결합에 의해 발생한 electric

field의 penetration depth는 다음과 같은 식으로 정의된다[6,7].

$$\zeta = \frac{\lambda}{2\pi} \left[ \frac{\epsilon_d - \epsilon_m}{\epsilon_m^2} \right]^{1/2} \quad (5)$$

즉, 표면플라즈몬 상호결합을 위한 금속의 종류와 접촉하는 반도체 물질에 의해 발생된 electric field가 영향을 줄 수 있는 임계거리가 정의된다. 일반적으로 질화갈륨 기반 발광다이오드의 경우 표면플라즈몬 상호결합을 위해 요구되는 금속층과 활성층간의 거리는 수십 나노미터 이내이다. 이와 같은 조건들을 만족시키지 못하는 경우 금속층에 의한 빛의 흡수 및 소멸 현상으로 인해 오히려 발광다이오드의 효율이 저하되는 문제점이 발생된다. 따라서, 표면플라즈몬 공명의 발광다이오드 적용을 위해서는 위와 같은 조건을 만족시킬 수 있는 구조의 구현이 필수적이다.

### 3. 표면플라즈몬 발광다이오드의 연구동향

오늘날 표면플라즈몬 상호결합 현상을 광소자에 적용하고자 전 세계적으로 표면플라즈몬을 이용한 광효율 향상에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다. 그 동안, UCLA 대학의 I. Gontijo 및 Duke 대학의 A. Neogi는 InGaN 활성층 위에 은을 증착한 구조에서 photoluminescence(PL) 스펙트럼 및 time-resolved PL(TR-PL) 측정을 통해 InGaN 활성층과 은 표면플라즈몬 사이의 상호결합으로 spontaneous emission rate가 크게 향상되는 것을 보고하였다[4,9]. 하지만, 본격적인 발광다이오드에 표면플라즈몬 상호결합의 적용은

Kyoto대학의 Okamoto 박사가 2004년 “Nature Materials“에 발표한 표면플라즈몬 상호결합을 통한 InGaN quantum well(QW)의 광특성 개선 결과 발표 후 활발하게 연구되었다[6].

Okamoto 박사는 그림 4(a)에서처럼 금속층과 InGaN QW과의 표면플라즈몬 상호결합 효과를 확인하기 위하여 투명 사파이어에 성장된 InGaN QW층을 이용하였다. InGaN QW 상부에 금속층을 증착하여 사파이어를 통해 통과된 PL laser source를 통해 발광하는 InGaN QW의 빛과 상부에 증착된 금속층의 표면플라즈몬 상호결합을 통한 광특성 변화를 관찰하였다. 이때, 은(Ag), 금(Au), 알루미늄(Al) 층을 사용함으로써 금속 종류 변화에 따른 표면플라즈몬 효과 및 금속층과 InGaN QW층 사이의 GaN spacer 두께 변화를 통해 금속층과 활성층 사이 거리 변화에 따른 표면플라즈몬 상호결합 효과 변화를 함께 확인하였다. 그 결과, 금속층의 표면플라즈몬 상호결합을 통해 InGaN QW의 광특성 개선을 확인하였다. 특히, 금속종류에 따라 서로 다른 PL 세기 개선정도를 보이는데, 이와 같은 결과는 금속마다 서로 다른 플라즈몬 에너지를 갖기 때문이며, 성장된 활성층의 발광장과 유사한 에너지를 가질 때 가장 큰 증가폭을 보였다. 따라서, 은을 사용하였을 때 청색 발광을 하는 InGaN QW의 효율이 가장 증가하는 것을 볼 수 있다. 그리고 그 증가폭은 GaN spacer 두께가 두꺼워짐에 따라 계면에서 수직 방향으로 멀어질수록 지속적으로 감소하는 것을 확인하였다. 추가적으로 그림 4(c)의 그래프에서처럼 은을 사용하여 표면플라즈몬 상호결합을 일으켰을 경우 InGaN QW의 내부양자효율이 7배 가까이 향상되는 것을 바탕으로 표면플라즈몬 상호결합을 통한 spontaneous emission rate 증가 및 내부양자효율 개

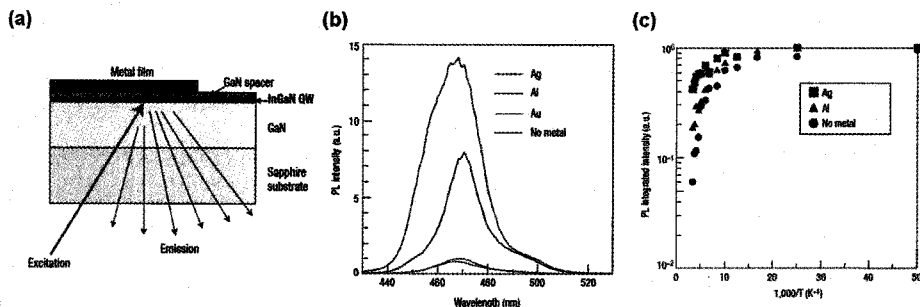
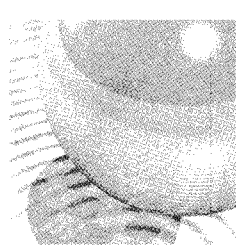


그림 4. (a) 측정된 InGaN QW구조의 모식도, (b) 금속층 종류에 따른 InGaN QW의 상온 PL측정 결과, (c) 금속층 종류에 따른 InGaN QW의 온도 변화 Integrated PL 측정결과. [6]



선을 확인하였다. 이와 같은 결과들은 표면플라즈몬 상호결합 메커니즘을 발광다이오드에 적용함으로써 내부 양자효율 및 광출력 개선의 가능성을 제시하였다. 국내에서도 금속을 이용한 InGaN QW의 광특성 개선 연구가 이뤄졌는데, 2010년 전북대 서은경 교수 그룹은 백금(Pt) 나노입자를 InGaN QW층 상부에 형성하여 표면플라즈몬 상호결합을 통한 광특성 향상을 보고하였다[10]. 본 연구에서는 열처리 시간 변화를 통해 InGaN QW 박막 상부에 다양한 형태의 백금 나노입자를 형성한 뒤, 백금 나노입자에 의한 표면플라즈몬 상호결합 특성을 확인하였다. 그 결과 특정 형태의 나노입자가 증착된 경우, InGaN QW의 표면플라즈몬 상호결합에 의한 spontaneous emission rate가 증가 및 내부양자효율 개선을 확인하였다.

표면플라즈몬 발광다이오드를 개발하기 위한 초기 연구로 Taiwan 대학의 Yang 교수 그룹은 금속층을 발광다이오드 p형 질화갈륨층 상부에 증착함으로써 표면플라즈몬 상호결합을 통한 발광다이오드의 광특성을 개선하고자 하였다[11]. 그림 5(a)는 발광다이오드의 전류확산층 상부에 은층을 증착한 구조로서, 표면플라즈몬 상호결합에 의한 광특성 증가폭이 금속층과 활성층간의 거리가 수직 방향으로 멀어질수록 지수적으로 감소하는 문제점을 해결하고자 p형 질화갈륨층의 두께를 수십나노미터 이내로 감소시켰다. 그 결과 그림 5(b)에서 보는바와 같이 발광다이오드 상부에 증착된 은층과 발광다이오드의 활성층의 엑시톤과의 표면플라즈몬 상호결합을 통해 PL특성 및 광출력이 향상되었다. 하지만, 본 구조에서는 일반적인 p형 질화갈륨층의 두께(150~250nm) 보다 얇은 80nm 두께의 p형 질화갈륨층을 사용한 결과 발광다이오드의 series resistance 및 forward voltage가 증가하는 등의 전기적 특성 저하가 관찰되었다. 국내에서도 발광다이오드 p형 질화갈륨층 상부에 증착된 금속을 통한 표면플라즈몬 발광다이오드의 연구가 진행되었는데, 인하대 오범환 교수 그룹은 p형 질화갈륨층의 두께를 변화시키지 않고 상부에 금속나노입자를 형성함으로써 활성층과의 직접적인 표면플라즈몬 상호결합이 아닌 발광다이오드 내부에 전반사로 가둬진 빛과의 상호결합을 통해 발광다이오드의 광출력 효율을 개선시켰다[12].

한편, 발광다이오드에서 금속층과 QW과의 거리조절의 문제점을 해결하고자 광주과학기술원 박성주 교수 그

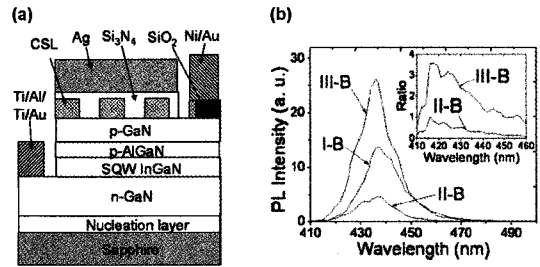


그림 5. (a) 은층을 발광다이오드 상부 전류확산층에 증착한 표면플라즈몬 발광다이오드, (b) 금속층 유무에 따른 표면플라즈몬 발광다이오드의 PL 측정결과. (I-B: 금속층이 없는 발광다이오드, III-B: 금속층이 있는 발광다이오드)(11)

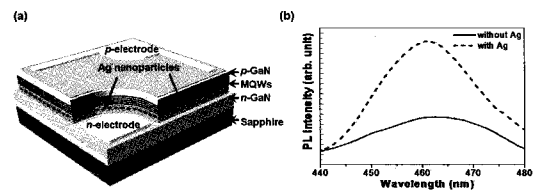


그림 6. (a) 은 나노입자가 QW 하부에 삽입된 표면플라즈몬 발광다이오드, (b) 은 나노입자 유무에 따른 QW의 상온 PL 측정 결과.(13)

룹은 표면플라즈몬 상호결합을 위한 금속을 발광다이오드 외부가 아닌 발광다이오드 내부에 삽입한 새로운 구조의 표면플라즈몬 발광다이오드를 최초로 제안하였다 [13,14]. 그림 6(a)는 본 연구에서 사용한 표면플라즈몬 발광다이오드로서 은의 열처리를 통해 은 나노입자로 만들어 발광다이오드 QW 하부에 형성시켰다[13]. 그리고 질화갈륨층의 재성장을 통해 은 나노입자를 n형 질화갈륨층 내부에 삽입하였다. 이 위에 QW 및 p형 질화갈륨층을 성장함으로써 금속나노입자와 QW 사이의 거리를 수십나노미터 이내에 위치시켰다. 특히, 앞서 소개된 연구그룹들과는 달리 p형 질화갈륨층의 두께를 상용화 제품에서 사용하는 두께를 사용함으로써 발광다이오드의 전기적 특성의 저하를 방지하였다. 그림 6(b)는 QW 하부에 은 나노입자가 삽입된 표면플라즈몬 발광다이오드의 상온 PL 결과를 보여주고 있다. 그림에서 볼 수 있는 것처럼 은 나노입자를 가지지 않는 일반적인 발광다이오드보다 상온 PL 세기가 2배정도 증가하였는데, 특히 파장에 따른 PL 증가폭을 확인해본 결과 450nm 영역에서 가장 높은 증가폭을 보였고, 이 영역이 은 나노입자의 공명파장 영역과 일치하는 것을 통해 PL 특성의 개선이 은 나노입자의 표면플라즈몬과의 상호결합에 의한 현상임을 증명하였다.

# 플라즈몬의 발광다이오드 응용

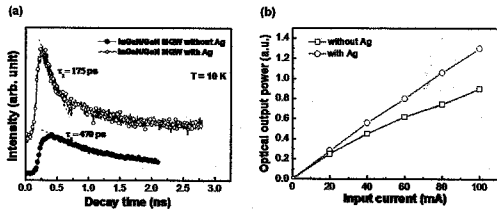


그림 7. (a) 은 나노입자가 유무에 따른 TR-PL 측정결과, (b) 은 나노입자 유무에 따른 발광다이오드의 광출력 결과.(13)

본 연구에서는 추가로 표면플라즈몬 상호결합에 의한 발광다이오드 내부양자효율 변화를 확인하기 위하여 TR-PL을 측정하였다. 그림 7(a)는 은 나노입자 유무에 따른 발광다이오드의 TR-PL 결과이다. 결과에서 볼 수 있는 것처럼 은 나노입자가 QW 하부에 삽입된 표면플라즈몬 발광다이오드 엑시톤의 decay time이 훨씬 짧았고, 이와 같은 결과는 발광다이오드의 활성층 내부에 엑시톤이 은 나노입자의 표면플라즈몬 electric field와 상호결합을 하고, 이를 통해 발광다이오드의 spontaneous emission rate가 증가하였기 때문이다. 이와 같은 발광다이오드의 spontaneous emission rate가 증가하는 발광다이오드의 내부양자효율을 증가 및 그림 7(b)에서처럼 광출력을 20mA에서 35% 개선시켰다.

이후, 앞서 소개된 은 나노입자가 QW층 하부에 삽입된 발광다이오드보다 개선된 구조로서 그림 8(a)와 같이 은 나노입자가 QW층 상부 p형 질화갈륨층에 삽입된 표면플라즈몬 발광다이오드가 연구되었다[14]. 본 구조에서는 은 나노입자를 그림 8(b)의 transmission electron microscopy(TEM) 이미지에서처럼 p형 질화갈륨층 내부에 삽입함으로써 금속나노입자를 QW 하부에 삽입하였을 때 발생 가능한 QW의 막질 및 효율 저하를 해결하였고 금속나노입자와 QW 사이의 거리 조절을 훨씬 용이하게 하였다. 또한 금속층의 증착 두께 및 열처리 조건의 다양화를 통해서 금속나노입자의 밀도를 다양하게 하여

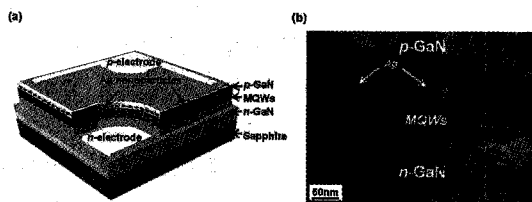


그림 8. (a) 은 나노입자가 QW 층 상부에 삽입된 표면플라즈몬 발광다이오드, (b) 표면플라즈몬 발광다이오드의 TEM 이미지.(14)

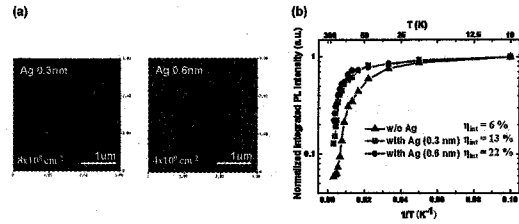


그림 9. (a) 은 나노입자 밀도 변화에 따른 AFM 이미지, (b) 은 나노입자 밀도 변화에 따른 표면플라즈몬 발광다이오드의 온도변화 Integrated PL 및 내부양자효율 변화 그래프.(14)

금속나노입자 밀도에 따른 표면플라즈몬 특성 변화도 함께 확인하였다.

그림 9(a)는 금속층의 증착 두께 변화에 따른 금속나노입자 밀도 변화를 측정된 atomic force microscopy (AFM) 이미지이다. AFM 이미지에서처럼 은층의 증착 두께가 증가할수록 은 나노입자의 밀도가 함께 증가하는 것을 확인하였고, 이때 은 나노입자의 사이즈에는 큰 변화가 없었다. 본 연구에서는 이렇게 형성된 두 종류의 은 나노입자를 가지고 표면플라즈몬 발광다이오드를 제작하였다. 그 결과 그림 9(b)의 온도 변화 PL결과에서처럼 은 나노입자가 p형 질화갈륨층에 삽입된 발광다이오드의 경우 우수한 광특성과 높은 내부양자효율을 보였다. 특히, 은 나노입자의 밀도가 증가함에 따라 PL 세기 및 내부양자효율의 개선 정도가 더 컸다. 이와 같은 이유는 은 나노입자 밀도가 증가함에 따라 표면플라즈몬 상호결합 세기 및 가능성이 함께 증가하였기 때문이다.

표면플라즈몬 발광다이오드 제작을 통해 전기적·광학적 특성도 확인하였다. 전기적 특성의 경우, 그림 10(a)의 전류-전압(I-V) 결과에서처럼 은 나노입자의 삽입에 따른 전기적 특성의 저하는 없었다. 하지만 은 나노입자의 밀도가 증가함에 따라 발광다이오드의 series resistance 및 reverse current leakage가 약간 증가하는 것을 확인하였다. 이와 같은 결과는 은 나노입자가 증가함에 따라 은 나노입자가 질화갈륨에 의해 감싸지면서 상부에 결함이 발생하였기 때문이다. 이렇게 생긴 결함은 전류의 leakage path로 작용하여 reverse current leakage를 증가시켰다. 이와 같은 부분은 추후 표면플라즈몬 발광다이오드의 최적화를 위해 반드시 해결해야 할 문제들 중의 하나로 현재도 문제 해결을 위해 연구가 진행 중이다. 발광다이오드의 광출력의 경우, 은 나노입자가 활성층 상부에 삽입된 표면플라즈몬 발광다이오드가

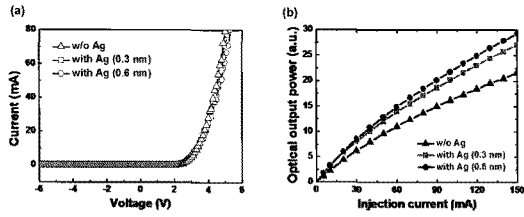
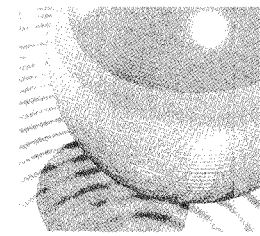


그림 10. 은 나노입자 밀도 변화에 따른 표면플라즈몬 발광다이오드의 (a) 전류-전압 그래프 및 (b) 광출력 측정 결과.(14)

20mA에서 40% 증가된 광출력을 보였고 은 나노입자의 밀도가 증가함에 따라 개선정도도 함께 증가였다.

지금까지 현재 상용화되어 사용되고 있는 질화갈륨 기반 발광다이오드 분야의 표면플라즈몬 상호결합의 응용 및 연구동향을 소개하였다. 앞서 소개한 연구동향 및 결과에서처럼 금속층 및 금속나노입자를 이용한 표면플라즈몬 상호결합을 통해 발광다이오드의 내부양자효율 및 광출력을 향상시키는 연구가 활발히 이뤄져왔다. 그러나 표면플라즈몬 공명을 위해 얇은 두께의 p형 질화갈륨을 사용한 경우, 발광다이오드의 전기적 특성이 저하되는 문제점과, 금속나노입자 형태로 발광다이오드 내부에 삽입한 경우 낮은 금속나노입자 밀도 및 질화갈륨층 재성장시 발생하는 결함 등의 문제로 인해 Okamoto 교수가 소개했던 7배 이상의 내부양자효율 향상에 비해 낮은 광출력을 보이고 있다. 그러므로 표면플라즈몬 상호결합을 발광다이오드에 적용하기 위한 최적화된 표면플라즈몬 발광다이오드 구조 도출이 요구되고 있는 실정이며, 세계 여러 선두그룹을 중심으로 활발한 연구가 이뤄지고 있다.

## 4. 결론

고효율 발광다이오드 개발을 위한 연구는 세계적으로 많은 연구가 진행되어 왔고, 지금까지도 활발한 연구가 진행되고 있다. 특히, 발광다이오드 반도체층의 성장 및 물성에서 발생하는 높은 결함 밀도나 QCSE 같은 현상들은 내부양자효율 및 광출력 개선을 위해서 반드시 해결되어야만 하는 분야이다. 지금까지 발광다이오드의 내부양자효율을 향상시키기 위해 다양한 연구가 이뤄졌지만 한계수준에 봉착하였고, 대부분의 기술들은 미국·일본 등의 선도 국가들에 의한 특허 선점으로 인해 국내 기업이 앞서가기 어려운 상황이다. 그러나 표면플라즈몬 상호결합을 이용한 spontaneous emission rate 개선 방법은 발광다이오드의 내부양자효율 및 광출력을 크게 향상시킬 수 있는 혁신적이고, 현재까지 개발된 사례가 없는 독창적인 방법으로서 발광다이오드 효율의 한계를 극복할 수 있는 기술로 평가받고 있다. 이미 앞서 소개한 내용처럼 여러 연구그룹들에 의해 표면플라즈몬에 의한 광효율개선 효과를 확인하였고, 여러 형태의 표면플라즈몬 발광다이오드도 이미 소개가 되었다. 하지만, 지금까지 보고된 표면플라즈몬 발광다이오드의 경우, 얇은 p형 질화갈륨층에 의한 전기적 특성 저하, 낮은 금속나노입자 밀도, 재성장시 발생하는 결함 등의 문제점들이 보고되고 있다. 따라서, 이러한 문제들의 해결을 위한 표면플라즈몬 발광다이오드 구조 도출은 신개념·고효율 발광다이오드의 개발을 위해 반드시 해결해야만 하는 숙제이다.

## 참고 문헌

- [1] J. S. Speck and S. J. Rosner, *Physica B* 273, 24 (1999).
- [2] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* 56, R10024 (1997).
- [3] T. Takeuchi, C. Wetzel, S. Yamaguchi, H. Sakai, H. Amano, I. Akasaki, Y. Kaneko, S. Nakagawa, Y. Yamaoka, and N. Yamada, *Appl. Phys. Lett.* 73, 1691 (1998).
- [4] A. Neogi, C. W. Lee, H. O. Everitt, T. Kuroda, A. Tacheuchi, and E. Yablonovitch, *Phys. Rev. B* 66, 153305 (2002).
- [5] K. Okamoto, Y. Kawakami, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 15, 1199 (2009).
- [6] K. Okamoto, I. Niki, A. Shvartser, Y. Narukawa, T. Mukai, and A. Scherer, *Nat. Mater.* 3, 601 (2004).
- [7] H. Raether, *Surface plasmon on smooth and rough surface and on grating*, Springer, Berlin, (1988).
- [8] A. Liebsch, *Electronic Excitations at Metal Surfaces, Physics of Solids and Liquids*, Ansgar, Libsch, (1997).
- [9] I. Gontijo, M. Boroditsky, E. Yablonovitch, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, *Phys. Rev. B* 60, 11564 (1999).
- [10] T. S. Oh, H. Jeong, Y. S. Lee, J. D. Kim, T. H. Seo, H. Kim, A. H. Park, K. J. Lee, and E. K. Suh, *Appl. Phys. Lett.* 95, 111112 (2009).
- [11] D. M. Yeh, C. F. Huang, C. Y. Chen, Y. C. Lu, and C. C. Yang, *Appl. Phys. Lett.* 91, 171103 (2007).
- [12] J. H. Sung, J. S. Yang, B. S. Kim, C. H. Choi, M. W. Lee, S. G. Lee, S. G. Park, E. H. Lee, and B. H. O, *Appl. Phys. Lett.* 96, 261105 (2010).
- [13] M. K. Kwon, J. Y. Kim, B. H. Kim, I. K. Park, C. Y. Cho, C. C. Byeon, and S. J. Park, *Adv. Mater.* 20, 1253 (2008).
- [14] C. Y. Cho, M. K. Kwon, S. J. Lee, S. H. Han, J. W. Kang, S. E. Kang, D. Y. Lee and S. J. Park, *Nanotechnology* 21, 205201 (2010).

## 약 령



### 조 주 영

2003년 2월 한국항공대학교 학사 (재료공학)  
 2007년 8월 광주과학기술원 석사 (신소재공학)  
 2007년 9월-현재 광주과학기술원 박사과정 졸업 예정 (신소재공학)

## 약 령



### 박 성 주

1976년 2월 서울대학교 학사 (화학)  
 1979년 2월 서울대학교 석사 (표면화학)  
 1985년 2월 Cornell University 박사 (물리화학)  
 1985년-1987년 IBM T. J. Watson 연구소 연구원  
 1987년-1995년 한국전자통신연구소 연구원  
 1995년-현재 광주과학기술원 신소재공학과 교수  
 2001년-2006년 과기부 선정 wide bandgap LED 국가지정연구실(NRL)  
 2003년-현재 한국과학기술한림원 정회원  
 2006년-현재 광주과학기술원-삼성LED 연구센터장  
 2008년-현재 광주과학기술원 과학기술응용 연구소장