

論文98-35D-8-4

MOCVD로 성장된 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ MQW 구조의 청색 발광다이오드의 특성

(Characteristics of a Blue Light Emitting Diode with $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ MQW Structure Grown by MOCVD)

李昔憲*, 裴城範*, 太興植*, 李承夏*, 咸成鎬**,
李龍鉉*, 李正熙*

(Suk-Hun Lee, Sung-Bum Bae, Heung-Sik Tae, Seung-Ha Lee,
Sung-Ho Hahm, Yong-Hyun Lee, and Jung-Hee Lee)

요 약

Si과 Zn를 동시에 도핑한 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 활성층으로부터 발생하는 donor-acceptor 전이의 청색발광을 이용하는 다중 양자우물(MQW) 구조의 청색 LED를 제조하였다. 활성층인 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 박막을 포함하는 이중접합구조를 사파이어 (0001) 기판위에 MOCVD방법으로 800°C에서 성장시켰다. 제조된 청색 LED의 전기적 특성은 -13 V의 역방향파괴(reverse breakdown) 전압 그리고 4~4.5 V의 순방향 turn-on 전압을 나타내었고, 광특성은 460 nm 부근의 발광중심 파장을 갖고, 5 mA 이상의 전류에 대하여 선형적인 광출력을 나타내었다.

Abstract

A blue LED of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ multiple quantum well structure, which had the blue emission spectrum of donor-acceptor pair transition generated from Si-Zn co-doped $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ active layer, was fabricated. The $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ MQW heterojunction LED structure was grown by MOCVD on the sapphire substrate with (0001) surface orientation at 800°C. The fabricated LED exhibited forward cut-in voltage of 4~4.5 V and reverse breakdown voltage of -13 V. Its optical characteristics showed that the center wavelength of peak emission occurred at 460 nm and the optical intensity was increased linearly with respect to the injected electrical current above 5 mA.

I. 서 론

III-V 질화물 반도체를 이용한 광소자는 청색 발광

* 正會員, 慶北大學校 電子電氣工學部

(School of Electrical and Electronic Engineering,
Kyungpook National University)

** 正會員, 慶北大學校 센서技術研究所

(Sensor Technology Research Center, Kyungpook
National University)

接受日字:1998年6月18日, 수정완료일:1998年7月27日

다이오드의 경우 옥외 디스플레이로의 응용이 확대되고 있으며, 레이저다이오드의 경우 짧은 파장의 단색 광원으로 DVD 등 멀티미디어 시대의 기록밀도를 높이는데 응용이 기대되고 있다.^[1,2,3] 또한 AlGaIn을 통해 붉은 색 파장영역에서의 발광도 가능하여 질화물 반도체만을 이용한 백색광원이나, 디스플레이에 질화물 반도체의 전망을 밝게 해 주고 있다.^[4] 이러한 질화물 발광소자는 안정된 발광특성과 높은 효율을 가지나 그 응용에 있어 가장 중요한 문제는 발광영역(emission region)으로 이용되는 InGaIn층의 결정성과 광학적 특성 제어기술이 부족한 점이다. In의 조

성비는 자외선 영역으로부터 초록색 영역에 이르는 발광파장의 광소자를 가능하게 해준다.

$In_xGa_{1-x}N$ 박막의 성장시 indium이 높은 성장온도에서는 분압이 높아 스스로부터 쉽게 해리(dissociation)가 되고, 반면 성장온도가 낮으면 해리는 쉽게 일어나지 않지만 성장되는 $In_xGa_{1-x}N$ 박막의 결정성이 크게 떨어진다. 이러한 $In_xGa_{1-x}N$ ternary 결정성장의 제어성이 충분히 고려된 상태에서 청색파장대의 발광효율(emission efficient)을 높이는 것이 필요하다.^[5]

Si과 Zn를 동시에 도핑하여 donor-acceptor간 전이를 이용하고자 $In_xGa_{1-x}N$ 단결정 박막을 이중접합(heterojunction)구조로 성장시켜 청색발광 LED 소자를 제조하였다. $In_xGa_{1-x}N$ 박막은 700°C 이상에서 성장된 시편에 대해서 XRD 분석을 통하여 그 박막 결정성을 확인하였고, PL등의 방법으로 조사한 indium의 조성비는 각각 12~13%로 측정되었다. 성장온도를 680°C로 낮춘 경우 indium 조성비는 최대 약 20%까지 증가되었다. 이러한 결과를 바탕으로 한 다중양자우물(multiple quantum well : MQW) 구조의 $In_xGa_{1-x}N$ 를 성장시켜 PL 분석을 수행한 후 식각 및 금속접촉과정을 거쳐 LED 소자를 제작한 결과 비교적 우수한 발광특성과 전기적 특성을 얻을 수 있었으며 상품화 단계의 LED 제조를 위해 개선하여야 할 문제점이 확인되었다.

II. $In_xGa_{1-x}N$ MQW 구조의 청색 발광다이오드

1. MQW 구조의 성장(p-GaN/Si-Zn dopd $In_xGa_{1-x}N$ MQW/n-GaN)

앞서 기술한 바와 같이 Si-Zn co-doped $In_xGa_{1-x}N$ 단결정 박막을 포함하는 이중접합(heterojunction)구조를 성장시켜 청색 발광다이오드를 제조하였다. Si와 Zn의 동시 도핑은 주계-받개쌍(donor-acceptor pair)을 발광성 재결합 경로로 하는 주계-받개 꼭지점(DA peak)을 얻고자 함이다. 기판은 뒷면이 연마(polishing) 되지 않은 (0001) 사파이어를 사용하였으며, Si-Zn가 동시 도핑된 $In_xGa_{1-x}N$ 단결정 박막의 성장온도는 결정성을 높이기 위해 800°C에서 성장하였고, 발광효율을 높이기 위해 MQW 구조를 갖도록 하였다.^[6] 이때 QW의 well과 barrier의 두께는

50Å/50Å의 3 주기로 성장하였고, well 영역만 DMZn 유량을 10 nmole/min 으로 Zn를 도핑하였다. 이때 well과 barrier 영역의 TMGa/TMIn 유량비는 각각 10/30, 10/8 μ mole/min으로 하였다. 이렇게 성장한 $In_xGa_{1-x}N$ 은 각각의 indium 함유량은 13%와 5% 예상된다. QW 구조 성장에 앞서 bulk 형태로 성장한 $In_{0.13}Ga_{0.87}N$ 시편에 대하여 XRD 측정된 것을 그림 1에 나타내었다. 이를 통해 박막의 결정성을 확인할 수 있었다.

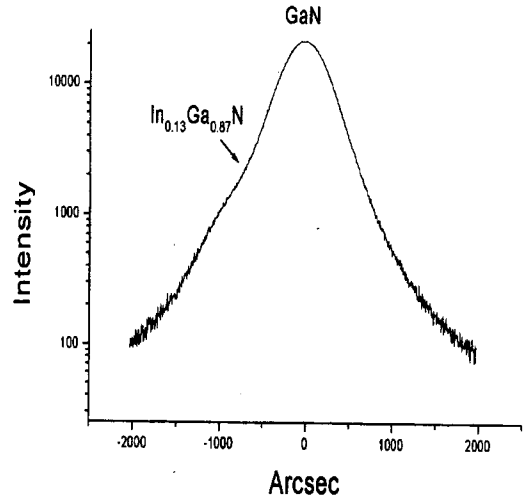


그림 1. $In_{0.13}Ga_{0.87}N$ 의 X-ray diffraction 측정
Fig. 1. Measurement of X-ray diffraction of $In_{0.13}Ga_{0.87}N$.

표 1. Si-Zn co-doped $In_xGa_{1-x}N$ MQW 이중접합 구조의 성장조건

Table 1. Growth conditions of Si-Zn co-doped $In_xGa_{1-x}N$ MQW DH structure.

No.	Step	Substrate Temp.(°C)	Deposited material	Layer thickness
1	H ₂ cleaning	1030	-	-
2	GaN buffer	500	GaN	300 Å
3	n-GaN epilayer	1020	GaN	2.2 μ m
4	Si-Zn co-doped $In_xGa_{1-x}N$	800	$In_xGa_{1-x}N$	300 Å
5	p-GaN epilayer	1020	GaN	0.5 μ m
6	Thermal annealing	720	-	-

한편 청색발광다이오드 제조시 금속접촉 특성 향상과 QW 영역으로의 캐리어 구속(carrier confining)을 증가시키기 위하여 n 및 p-GaN 단결정 층을 MQW의 양쪽에 배치하였으며, 그 도핑 농도는 각각

$9 \times 10^{18}/cm^3$ 과 $3.5 \times 10^{17}/cm^3$ 로 하였다. 한편 p-GaN 층의 활성화(activation)를 위하여 성장후 열처리하였다. 각 층에 대한 구체적인 성장조건들은 표 1에 정리하였다.

성장된 이중접합 구조를 갖는 청색 LED용 시편에 대해서 청색 발광소자를 제조하기 전에 He-Cd 레이저를 이용하여 Zn의 도핑에 따른 PL (photoluminescence) 특성과 꼭지점 파장의 이동을 분석하였다. 그림 2는 silane(SiH_4)의 유량을 2.5 sccm으로 하고, DMZn의 유량이 6.7 nmole과 10 nmole인 두 경우에 대해 상온에서 PL 측정 결과를 나타낸 것이다. DMZn의 유량이 10 nmole일 때, 주된 꼭지점의 발광 강도(emission intensity)는 2배 가량 증가하였다. 파장 450 nm에서 p-GaN의 발광 꼭지점이 발생하고, 460~475 nm 근처에서 Zn-Si 동시 도핑에 의한 주계-발계 꼭지점이 나타나고 있다.

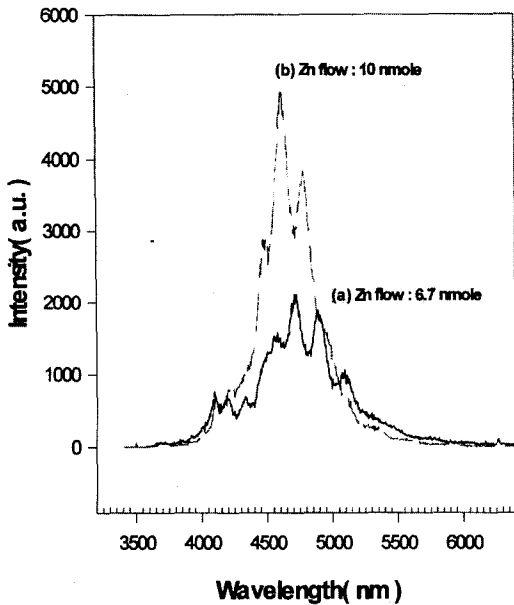


그림 2. TMZn 유량의 변화에 따른 PIN 구조의 PL 측정
Fig. 2. PL measurements of PIN structures depending on the flow rate of TMZn.

그리고 410 nm와 425 nm에서 $In_xGa_{1-x}N$ 에 의한 band-edge emission이 관측되었다. 또한 n-GaN의 bound exciton에 의한 것으로 보이는 peak가 약 365 nm 근처에서 약하게 관측되었다. Nakamura 등은 성장온도와 III족 source인 DEZn의 유량을 변화시킬

때 유사한 발광 꼭지점의 이동과 강도 변화를 보고한 바 있다.^[11]

그림 3은 DMZn 유량을 10 nmole으로 고정시키고 $In_xGa_{1-x}N$ 의 이중접합 구조를 bulk형, SQW형, MQW형의 결정층의 구조로 변화시켰을 때, 상온에서의 PL 측정 결과를 나타낸 것이다. Zn와 Si이 동시 도핑되면서 에너지밴드폭내에 각각 acceptor와 donor의 불순물 준위를 형성하여 460 nmole 근처에서 꼭지점이 강하게 관측되고 있으며, $In_xGa_{1-x}N$ 박막에 의한 band-edge 발광 꼭지점(emission peak)이 425 nm와 430 nm 위치에서 관측되고 있는데, 이는 Zn가 도핑되지 않은 MQW 구조에서는 청자색 spectrum이 방출됨을 나타낸다. 한편 450 nm 근처에서는 p-GaN 꼭지점도 중첩되어 나타나고 있다.

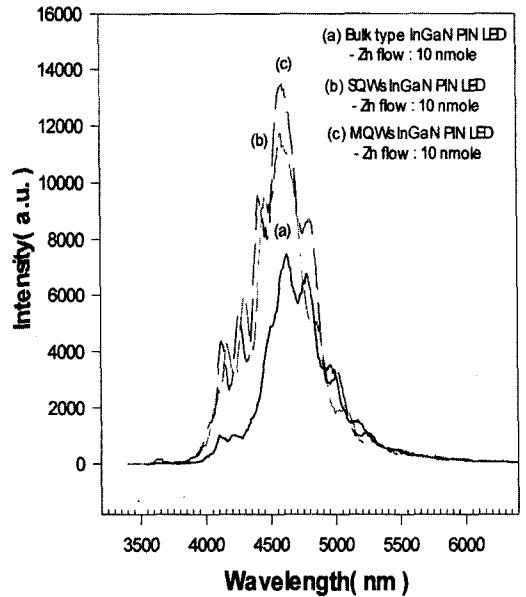


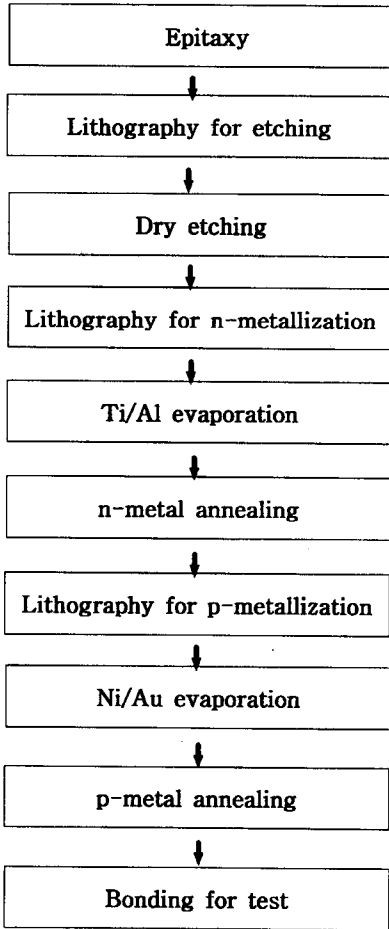
그림 3. 이중접합 구조에 따른 PL 측정
Fig. 3. PL measurements depending on the heterojunction structures.

2. 발광다이오드의 제조공정

표 2에 발광다이오드의 제조를 위한 공정의 흐름도를 나타내었다. 먼저 n영역의 저항성(ohmic) 접촉을 위해 사진식각을 통해 식각할 부분을 정의하고 건식식각 장비를 이용하여 n-GaN 단결정 층까지 식각하였다. 식각된 n-GaN 박막표면에 접촉금속의 영역을 정의하고 Ti/Al 금속을 증착하여 열처리함으로써 n형 금속접촉 공정을 완성하였다. 그러나 식각 도중 발생한 표면상태의 변화나 거칠기(roughness), scum 등

으로 n 형접촉 특성이 식각하기 전의 금속접촉 특성에 비해 크게 떨어짐을 알 수 있었다. 이후 최상층의 p-GaN 영역위에 p형 금속접촉을 위한 패턴을 정의하고 Ni/Au 금속을 증착한 뒤 600°C 내외에서 열처리하였다. 제조된 발광다이오드는 현재 개별 소자로 cleaving이 어려운 상태여서 bonding후 probe나 측정용 치구를 사용하여 전기, 광학적 특성을 조사하였다.

표 2. LED 제조 공정
Table 2. LED fabrication process



III. 청색발광다이오드의 특성 분석

1. 청색발광다이오드의 전기적 특성

Si-Zn가 동시 도핑된 MQW 구조의 청색발광다이오드 소자의 발광 특성을 조사하기 위해서 HP-4145B 반도체 파라미터 분석기를 이용하여 전류-전압 특성을 측정하였다. 제조된 소자는 투과전극(transparent

metal)이 없이 n 및 p-GaN에 저항성 접촉으로만 전극을 형성하였다. 그림 4는 제조된 발광 다이오드의 순방향 I_F - V_F 특성을 나타낸 것이다. Turn-on 전압이 4~4.5 V로 거의 모든 소자에 대해서 재현성있게 측정되었다. 한편 역방향의 절연파괴전압(breakdown voltage)은 -13 V로 안정되었다. 이러한 절연파괴전압은 다이오드를 구성하는 각층의 이종접합이 소자 동작에 적합할 만큼 우수하기 때문이라고 사료된다. 그러나 본 발광다이오드 제조 과정에서 p-GaN의 저항성 접촉은 물론 n-GaN의 저항성 접촉특성도 최적화되지 않은 상태여서 I_F - V_F 특성 곡선은 기울기(slope)가 완만한 경사를 이루고 있다. n 및 p 영역의 접촉저항을 포함한 직렬저

항은 49 Ω 으로 아직 상용제품의 경우에 비해 높은 편이다.

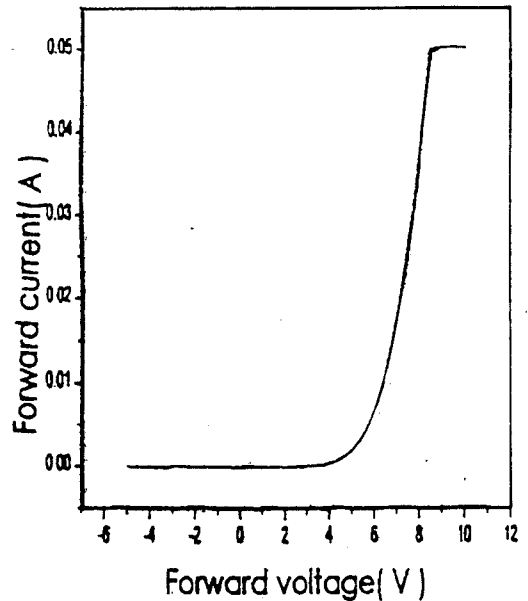


그림 4. 청색발광다이오드의 순방향 전류-전압 특성
Fig. 4. Forward I-V characteristic of blue LED.

2. 청색발광다이오드의 광특성

그림 5는 발광다이오드에 주입된 순방향 전류에 따른 광출력(optical output power)특성을 나타내었다. 이는 wafer 상에서 측정된 결과로서, 뒷면 polishing이 되지 않은 사파이어 기판의 뒤쪽으로 방출된 광출력을 측정한 결과이다. 전류의 주입에 따른 발광성 재결합이 5 mA 이상에서 50 mA 까지 선형적으로 나타남을 볼 수 있다. 작은 전류에서의 비선형성은 비발

광성 재결합이 우세하기 때문인 것으로 추정되며 50 mA 이상에서도 심각한 광출력의 포화현상은 나타나지 않고 있다. 이는 기판표면과 측면으로 방출된 광출력이 손실되어 측정할 수 없기 때문에 실제 광출력에 비해 매우 작을 것으로 보인다. 이 발광다이오드에 대하여 시간에 따른 안정성도 측정중에 있으며 수십 시간 이상의 동작에서 전기적, 광학적 특성의 심각한 열화를 보이지 않았다.

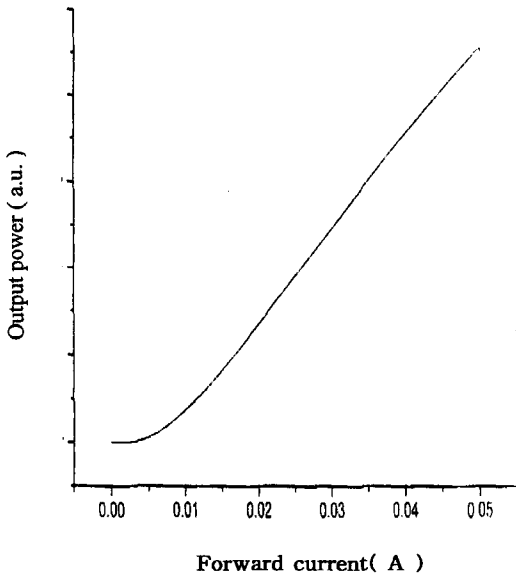


그림 5. 청색발광 LED의 output L-I 특성 곡선
Fig. 5. Output L-I characteristic curve of blue LED.

그림 6는 10 nmole의 Zn가 도핑된 MQW 청색 발광다이오드에 대한 순방향 전류에 따른 발광 스펙트럼을 측정된 것이다. 불순물에 의한 주계-받계(donor-acceptor) 꼭지점이 청색인 460 nm에서 관찰되며, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 꼭지점이 보라색 스펙트럼 영역에서 보이며 이는 PL 측정 결과와 일치한다. 순방향 전류를 25 mA까지 증가함에 따라 금지대(forbidden bandgap)내에 불순물 준위를 형성한 Zn에 의한 광방출이 증가하고 이와 함께 보라색 영역의 꼭지점도 그 세기가 커지는 것은 도핑된 Zn의 상태밀도(density of states)와 함께 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 의 전도대(conduction band)와 가전자대(valence band)에 있는 상태를 채우는 전자의 양이 증가하기 때문으로 보인다. 위에서 보는 바와 같이 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ MQW 다이오드는 400~500 nm대에서 두 개의 꼭지점을 갖는 넓은 스펙트럼을 가지고 있음을 알 수 있다. 따라서 이를 순수한 청

색광의 디스플레이용으로 응용하기 위해서는 근본적으로 EL 스펙트럼의 FWHM을 줄이기 위한 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 조성과 Zn 도핑의 제어를 높여야 한다. 이러한 결과를 바탕으로 향후 Zn의 도핑농도, MQW의 주기, 식각 및 저항성 접촉특성 개선 등으로 빛의 세기를 증가시킬 수 있을 것으로 사료된다.

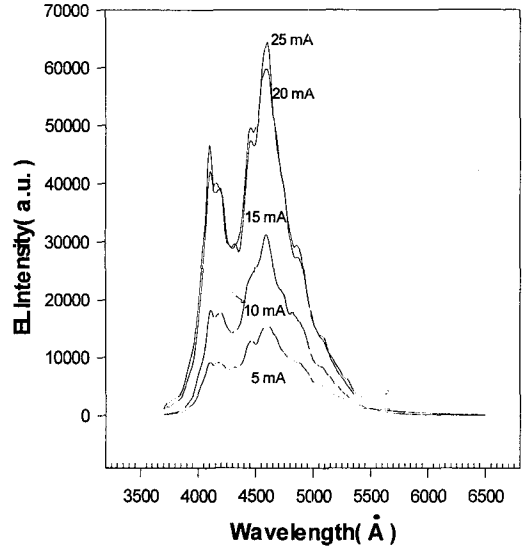


그림 6. 제작된 청색발광 LED의 EL 특성
Fig. 6. EL properties of fabricated blue light LED.



그림 7. 청색발광 LED의 발광모습
Fig. 7. Emission properties of blue light LED.

그림 7은 제조된 청색발광다이오드에 5.2 V의 순방향 전압에서 20 mA의 순방향 전류가 흐를 때 촬영한 발광사진이다. 그림에서 보듯이, 약간의 보라색 파장을 포함한 청색발광을 하는 것을 알 수 있다. 그러나 제조된 청색발광 다이오드는 투과금속(transparent metal)이 없는 구조이고, 소자의 크기도 크기 때문에 실제 측정된 발광특성이 실제소자의 발광특성을 모두 반영하고 있지 못하다. 따라서 저항성 전극 형성방법

을 개선하고, 소자의 적정크기로 재설계한 다음 완료된 다이오드를 패키징하여 측정함으로써 상용의 발광 다이오드와 비교할만 한 수준의 휘도와 안정성을 얻을 수 있다고 판단된다.

IV. 결 론

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 결정성장의 어려운 제어성을 극복하고 발광효율을 높이기 위한 Si-Zn co-doped $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 층을 포함하는 이중접합 구조의 청색 발광다이오드를 제조하였다. MOCVD를 이용한 결정성장후 PL 측정 결과, Si와 Zn에 의한 donor-to-acceptor transition 이 일어나는 것이 조사되었고, 주 발광 꼭지점의 위치는 460~470 nm에 관측되었다. 그리고 이러한 MQW $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 박막을 활성층으로 한 이중접합 구조의 청색발광다이오드를 제조하였다.

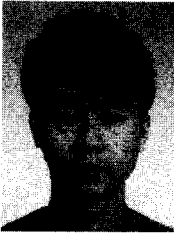
이렇게 질화물 반도체에 대한 성장조건을 확립한 후, Si-Zn co-doped MQW $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 형태의 청색 발광 소자(LED)를 제조하여 전기적 특성 및 광학적 측정을 수행하였다. 제조된 발광소자는 투과금속이 없는 n 및 p 전극 형태를 갖는 구조이다. 청색발광 소자의 turn-on 전압은 4-4.5 V로 모든 소자에서 신뢰성 있게 측정되었고, 발광다이오드의 EL 측정에서는 순방향 전류가 증가하면서 청색광의 방출이 증가하였으나 보라색 파장도 포함하고 있다.

본 연구의 결과로부터 디스플레이용의 InGaN계 발광다이오드를 제조함에 있어 발광효율과 고휘도 및 낮은 동작전압의 소자를 얻기 위해서는 첫째, 저항성 접촉을 향상시킬 수 있는 금속접촉(metallization) 공정 및 안정된 식각공정(dry etching) 등 전반적인 공정 조건의 최적화가 필요하다. 둘째, 소자의 크기와 구조 설계를 개선하고 제조된 다이오드를 개별소자로 패키징하여 측정하여야 한다. 셋째, 좀 더 근본적으로는 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 성장층의 indium 조성 제어범위를 넓히고, 그 결정의 질을 높여야 한다.

참 고 문 헌

- [1] S. Nakamura, G. Fasol, "The Blue Laser Diode-GaN Based Light Emitters and Lasers," Springer, 1997.
- [2] M. A. Haase, J. Qui, M. Depuydt, "Blue-green Laser Diodes", *Appl. Phys. Lett.*, vol. 59, no. 11, pp. 1272-1274, 1991.
- [3] Y. S. Park, "Future Prospects in Blue/UV Short Wavelength Optoelectronic Devices", *International Symposium on Blue Laser and Light Emitting Diodes*, Chiba, Japan, pp. 289-294, March, 1996.
- [4] I. Akasaki et. al, "Growth of GaN and AlGa_N for UV Blue p-n Junction Diodes", *J. Cryst. Growth*, vol. 128, pp. 379-383, 1983.
- [5] S. Nakamura et. al, "High Power GaN p-n Junction Blue Light Emitting Diodes", *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 31, no. 12A, pp. L1998-2001, 1991.
- [6] S. Nakamura et. al, "InGa_N Based Multi-quantum well structure Laser Diodes", *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 35, no. 1B, pp. L74-76, 1996.

저 자 소 개



李昔憲(正會員)

1969년 4월 27일생. 1995년 2월 제주대학교 공과대학 전자공학과 졸업(학부). 1997년 2월 경북대학교 전자전기공학부 반도체 전공 졸업(석사). 1997년 현재 경북대학교 전자전기공학부 반도체 전공(박사과정). 주관심

분야는 GaAs MOSFET, 질화물 반도체 성장 및 GaN 계 광소자



裴城範(正會員)

1974년 1월 4일생. 1997년 2월 경북대학교 공과대학 전자공학과 졸업(학부). 1997년 2월 ~ 현재 경북대학교 전자전기공학부 반도체 전공(석사과정). 주관심분야는 질화물 반도체 성장 및 GaN계 광소자



太興植(正會員)

1962년 11월 4일. 1986년 서울대학교 전기공학과 졸업(학사). 1988년 서울대학교 전기공학과 졸업(석사). 1994년 서울대학교 전기공학과 졸업(박사). 1995년 3월 ~ 1997년 3월 경북대학교 전자전기공학부 전임강사.

1997년 4월 ~ 현재 경북대학교 전자전기공학부 조교수. 주관심분야는 고밀도 플라즈마 소스 및 공정, 플라즈마내 전자파 전파 현상 및 고출력 마이크로파 소자

李承夏(正會員) 第31卷 B編 第7號 參照

현재 경북대학교 전자전기공학부 조교수

咸成鎬(正會員) 第34卷 D編 第9號 參照

현재 경북대학교 센서기술연구소 전임강사

李龍鉉(正會員) 第31卷 A編 第8號 參照

현재 경북대학교 전자전기공학부 교수

李正熙(正會員) 第32卷 A編 第11號 參照

현재 경북대학교 전자전기공학부 부교수