

## 광결정 Nanocavity를 갖는 InGaN/GaN 양자우물구조의 청색 광소자 공정 및 특성평가

### Fabrications and Characterizations of InGaN/GaN Quantum Well Light Emitting Devices Including Photonic Crystal Nanocavity Structures

최재호<sup>1</sup>, 이정택<sup>1</sup>, 김근주<sup>1,a</sup>  
(Jaeho Choi<sup>1</sup>, Jung Tack Lee<sup>1</sup>, and Keunjoo Kim<sup>1,a</sup>)

#### Abstract

The authors investigated the InGaN/GaN multi-quantum well blue light emitting devices with the implementation of the photonic crystals fabricated at the top surface of p-GaN layer and the bottom interface of n-GaN layer. The top photonic crystals result in the lattice-dependent photoluminescence spectra at the wavelength of 450 nm and however, the bottom photonic crystal shows a big shift of the photoluminescence peak from 444 nm to 394 nm. The sample with the bottom photonic crystal structure also shows the lasing effect at the wavelength of 468 nm. Furthermore, the quality enhancement for the crystal growth of GaN thin film on the bottom photonic crystal comes from the modulated compressive stress which was measured by the micro-Raman spectroscopy.

**Key Words** : Photonic crystal, Nanocavity, E-beam lithography, Blue light emission

#### 1. 서론

최근 들어 고체 광원으로써 발광다이오드(light emitting diodes: LEDs)는 적색, 청색, 및 녹색의 삼원색 및 백색이 구현됨으로써 총 천연색 광소자의 응용 분야가 산업 전반에 파급되고 있다. 특히, 기존의 형광등이나 백열등을 대체하기에 이르렀고, 관공서나 공공기관의 조명을 LED로 대체하려는 국가가 많아지고 있으며, 우리나라에서도 녹색성장 그린 에너지(green energy) 국가시책으로 추진 중이다. 또한 LED는 적은 전력이 소모되고 큰 발광 효율이 장점이다. 반도체 소자 내부의 양자효율이 적색은 80-90%, 녹색은 30-40%, 청색은 60-80%에 이른다. 그렇지만 반대로 외부로 나타나는 실제 양자효율은 이러한 내부 양자효율, 광 추출효율

및 전류 주입효율을 포함하며 10%대로 매우 낮은 광학적인 구조상의 문제점이 있다[1,2]. 외부의 양자효율이 낮은 이유의 주된 원인중 하나인 낮은 광 추출효율은 광소자(optoelectronics devices)에 사용된 반도체 재료의 물질이 공기와 비교하여 상대적으로 매우 큰 굴절률(GaN:2.54, GaAs:3.5)의 차이를 가지고 있기 때문이다[3-5]. 즉, 외부 양자효율은 굴절률  $n$ 에 대해서  $1/4n^2$ 에 비례하기 때문이다.

외부 양자효율은 광소자의 발광효율을 최종적으로 결정하므로 이를 개선하기 위하여 많은 연구가 진행되어 왔다. 특히, 표면을 나노 크기로 거칠게 만드는 조도(surface roughness) 효과를 이용하여 외부 양자효율을 높이는 방법이 활용되어 왔으며, 또한 최근에는 광결정(photonic crystals) 구조의 시도가 이루어지고 있다[6-9]. 여기서 광결정이란 가상의 메타물질(meta-material) 형태로서 실제 결정에서 X-선이 입사광원으로 결정격자에서 회절이 되는 것처럼, 가시광선 영역에서 빛이 회절 할 수 있도록 구조를 형성하는 데서 시작되었다[10]. 즉,

1. 전북대학교 기계공학과 및 공업기술연구원  
(전북 전주시 덕진동 덕진동 1가 664-14)

a. Corresponding Author : kimk@chonbuk.ac.kr

접수일자 : 2009. 10. 8

1차 심사 : 2009. 11. 18

심사완료 : 2009. 11. 23

두 가지 이상의 유전체가 주기적인 구조를 가지고 나노크기로 배열되어 있는 격자 주기성을 가지고 있다. 이 주기적인 배열에 의하여 빛이 물질을 통과할 때 결정을 통과하는 것과 같은 회절 특성을 나타낸다[11].

본 논문에서는 본 연구그룹에서 진행해 온 LED의 외부 양자효율을 증가시키기 위한 방법으로 전자빔 나노리소그래피(E-beam nano-lithography) 공정을 이용한 광결정 연구를 종합하여 review 하려 한다. 참고로 필요에 따라선 본 연구그룹에서 발간한 각 요소논문에서 나온 데이터를 다시 인용하는 경우도 있음을 밝혀둔다. 나노구멍을 주기적으로 배열하여 굴절을 변화를 주는 2 차원 광결정 구조를 청색 LED 구조에 삽입하는데 있어서 표면에 제작하는 상부 광결정 구조와 또는 LED구조의 박막을 성장하기 전에 n-GaN층에 먼저 성장하는 하부 광결정 구조의 두가지 형태로 제작하였다. 먼저 상부 광결정을 LED 최상부인 p-GaN층에 구멍직경이 150 nm를 가지고 있으며 격자상수를 230, 460, 690 및 920 nm으로 변화시키면서 만들어 주고, 이에 대하여 발광(photoluminescence: PL) 특성을 측정했다. 또 하나는 LED 구조를 n-GaN층에 형성된 삼각형태의 격자를 갖는 하부 광결정 위에 형성하였다. p-GaN층에 만든 것과 마찬가지로 n-GaN층에 전자빔 나노리소그래피 공정을 이용하여 구멍직경 150 nm, 격자상수 230 nm의 하부 광결정을 만들었다. 이렇게 제작된 LED구조에 대한 PL을 측정하였으며, 상부 광결정의 PL에 대한 격자영향과 하부 광결정의 LED PL 발광 특성 및 결정성장 그리고 결정특성 영향을 파악하였다.

## 2. 광결정 이론

### 2.1 광결정 밴드 갭

파동광학에서 굴절을 n인 표면에서 공기중으로 광이 투과하기 위해서는 1/4 파장 조건에 따라 반사 방지막(anti-reflection)을 파장의 1/4n 배의 두께로 코팅하여야 하며, 또한 반사 방지막의 굴절을  $n_{ar}$ 은 대략  $n^{1/2}$ 를 갖도록 설계하여야 한다. 표면에서의 굴절율의 변화가 크지 않게 함으로써 광의 투과가 원활하도록 하는 광학적 원리를 적용하여 굴절율이 큰 반도체 표면층에 일정한 구멍을 만들어 굴절을 단차를 줄이게 된다. 표면에 주기적으로 공기구멍을 만들어 줌으로써 광결정 구조를 형성하고, 광결정층의 평균적인 굴절율이 공기와 반도체층의 중간값의 영역에 있게 하면, 동일한 원리로

광이 원활하게 내부에서 외부로 투과하게 된다. 이러한 광결정은 또한 주기적으로 배열된 구멍에서의 광자의 회절현상을 야기하고 대칭특성에 따라 광자가 광 밴드 구조(photonic band structure)를 형성하게 된다. 이러한 광 밴드 구조는 전자의 에너지 밴드 구조와 유사하다.

고체물리학적 결정구조에서 전자는 원자 배열의 주기성으로 인해 쿨롱 포텐셜을 주기적으로 받아 구속되게 되며, 전자의 파동함수(wavefunction)가 슈뢰딩거 파동방정식(schrodinger equation)의 고유함수(eigenfunction) 해가 된다. 또한 이러한 해의 블로크정리(Bloch theorem)에 의한 반복성을 갖게 됨으로써, 에너지 밴드 구조(energy band structure)를 형성하게 된다. 또한 반도체의 물질에 따른 에너지 밴드의 고유 에너지 갭(energy gap)을 형성하게 된다. 이러한 주기적인 유사성은 광결정 구조에도 적용 가능하다. 광의 파동함수인 전기장과 자기장이 각각 맥스웰 파동방정식(Maxwell wave equation)의 고유함수(eigenfunction)의 해가 되며, 블로크정리의 반복성을 갖는 해가 주어지고, 아래에 상술한 것처럼 광결정의 광 주파수 밴드를 형성하게 된다.

전자역학(Electrodynamics)에서 자기장  $B(\vec{r})$ 에 대한 맥스웰 파동방정식은

$$\nabla \times \left[ \frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \nabla \times B(\vec{r}) \right] = \frac{\omega^2}{c^2} B(\vec{r}) \quad (1)$$

이며, 양자역학(Quantum Mechanics)에서 전자 파동함수  $\Psi(\vec{r})$ 에 대한 슈뢰딩거 파동방정식은

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\vec{r}) \right] \Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}) \quad (2)$$

이다. 여기서 두 방정식은 해가 각각

$$B(\vec{r}, t) = B(\vec{r})e^{i\omega t}, \quad (3)$$

$$\Psi(\vec{r}, t) = \Psi(\vec{r})e^{i\omega t} \quad (4)$$

이다. 고유치(eigenvalue) 방정식은 각각

$$\Theta B(\vec{r}) = \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 B(\vec{r}), \quad (5)$$

$$H\Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}) \quad (6)$$

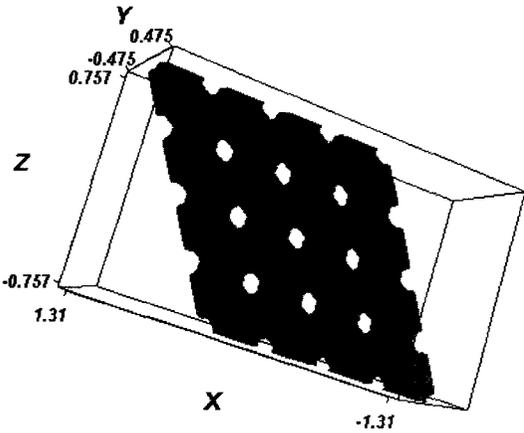


그림 1. GaN 박막에 나노구멍을 형성한 광결정 구조.  
 Fig. 1. Photonic crystal structure on GaN thin film with nanoholes.

이며, 이때 Hermitian 연산자는 각각

$$\theta = \nabla \times \left( \frac{1}{\epsilon(\mathbf{r})} \nabla \times \right), \quad (7)$$

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) \quad (8)$$

이다.

고체물리학(Solid State Physics)에서 고체 결정체는 격자상수  $a$ 에 원소의 기저집합(basis set)을 대입시켜 형성되는데, 이러한 원소의 반복성은 전자파동(electron wave)에 대해 다음과 같은 불특정리로 표현된다.

$$\Psi(\vec{r}) = U(\vec{r})e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = U(\vec{r} + \vec{a})e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (9)$$

또한 빛의 파장과 유사한 크기의 격자상수  $a$ 를 갖는 광결정에서 광파(light wave)에 대한 불특정리는

$$B(\vec{r}) = U(\vec{\rho})e^{i\vec{k} \cdot \vec{\rho}} e^{ik_z z} = U(\vec{\rho} + \vec{a})e^{i\vec{k} \cdot \vec{\rho}} e^{ik_z z} \quad (10)$$

이다. 자기장에 대한 밴드 구조의 계산 후, 다시 이를 전기장에 대해서 적용하면 완전한 광결정 밴드를 계산할 수 있다.

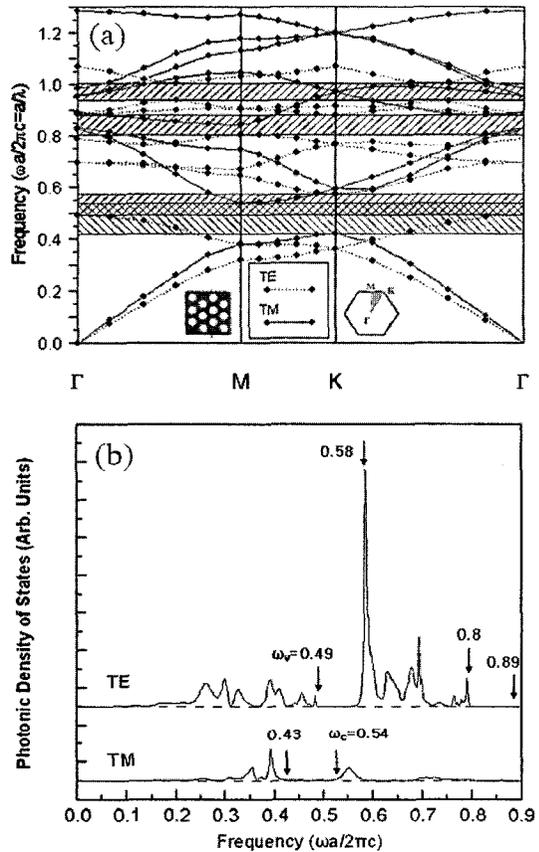


그림 2. 2차원 평면 격자구조를 갖는 광결정의 (a) 광 밴드구조[9]와 (b) 광 상태밀도.  
 Fig. 2. (a) Photonic band diagram[9] and (b) photonic density of states of photonic crystal for a two-dimensional flat lattice structure.

광결정 밴드에 대한 시뮬레이션 계산을 그림 1의 GaN 박막에 나노구멍을 형성한 광결정 구조에 대해 수행하였다. 굴절율은  $n=2.54$ 이고 육방정계 격자구조(hexagonal lattice structure)에 대해 격자상수와 파장의 비로 나타내는  $a/\lambda$  정규 주파수(normalized frequency)에 따라 밴드를 계산하였다. 광결정구조 시뮬레이션은 Rsoft사 Band Solver로 수행하였다. 광 밴드구조는 두께가 없는 평면 2차원 광결정 구조와 두께가 100 nm인 slab 형태의 2차원 광결정 구조에 대해서 각각 수행하였다.

그림 2는 2차원 평면 격자구조를 갖는 광결정에 대해 계산된 광 밴드구조이다. 편광방향은 횡 방향 전기장(transverse electric field: TE) 모드과 횡

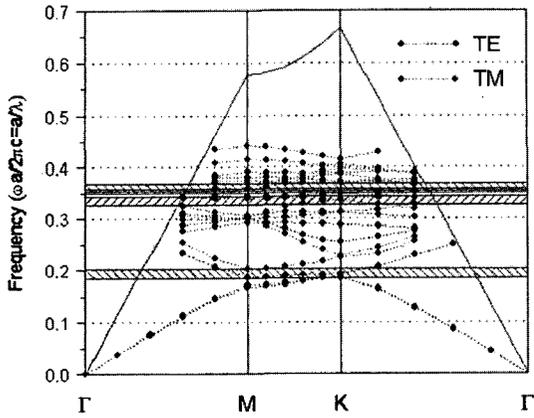


그림 3. 두께가 100 nm인 2차원 slab 구조의 광결정에 대한 광 밴드구조.

Fig. 3. Photonic band diagram for the two-dimensional slab photonic crystal with the slab thickness of 100 nm.

방향 자기장(transverse magnetic field: TM) 모드에 대해서 각각 계산하였다. 육방정계 2차원 격자에서는 대칭모드가  $\Gamma, M, K$  세 종류가 존재하며, TM 모드는 0.43-0.54 주파수 영역에서 밴드 갭을 형성하고, TE 모드는 0.49-0.58, 0.8-0.89, 0.94-1.1 세 주파수 영역에서 밴드 갭을 형성한다. 두 모드의 밴드 갭이 공유된 주파수 영역은 0.49-0.54 이다. 이 공유영역에서 광이 완전히 전파를 금지하는 영역이 되며 광 밴드 갭에 해당한다. 격자상수가  $a=230$  nm인 광결정에 대해 파장이 460 nm인 청색은 광결정을 통과할 수 없는 현상을 보이게 되며, 실험으로 확인할 수 있다.

그림 3은 두께가 100 nm인 2 차원 slab 구조의 광결정에 대한 광 밴드를 나타낸다. 직선형태의 light line은 공기의 자유공간에서 광 분산(dispersion)을 나타내고, 그 아래에서는 slab의 가이드 모드(guided mode)의 분산을 나타낸다. TE 모드는 0.32-0.34, 0.35-0.36 정규주파수 영역에서 밴드 갭을 형성하며, TM 모드는 0.18-0.20, 0.34-0.37 영역에서 밴드 갭을 형성한다. 따라서 광이 전파될 수 없는 광결정의 광 밴드 갭은 0.35-0.36 영역이다. 2차원 평판 광결정에서의 광 밴드 갭과 비교하여 비교적 slab 형태의 2차원 광결정 구조가 같은 파장의 광에 대해서 더 작은 격자상수에서 광 금지 갭이 형성됨을 알 수 있다. 즉 100 nm 보다 얇은 slab에 대해 밴드 갭이 그림 1의 2차원 평판 광결정의 광 밴드 구조로 수렴됨을 알 수 있다.

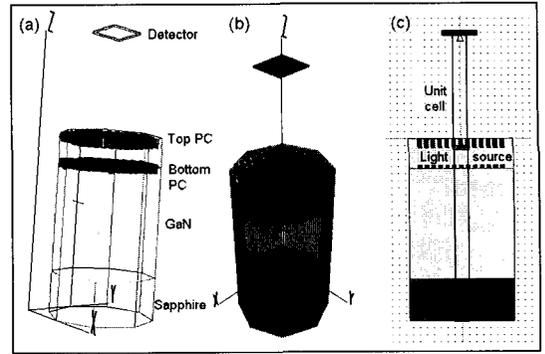


그림 4. 광결정 구조를 갖는 InGaN/GaN MQW 구조 시뮬레이션에 대한 3차원 모형.

Fig. 4. Three dimensional simulation layout for the InGaN/GaN MQW structure with photonic crystal nanocavity.

## 2.2 레이저 발광모드

광결정 구조에서의 광 투과 시뮬레이션은 Rsoft사의 Fullwave로 수행하였다. 광결정은 육방구조를 갖으며, 단위세포의 주기특성을 이용하여 2차원 무한크기의 광결정에 대해 계산하였으며, 경계조건은 PML(perfect matching layer)를 활용하였다. 광소자구조는 표면층에 p-GaN층이 250 nm 두께를 가지며, 그 밑층에 InGaN/GaN 양자우물구조가 5 주기로 적층되어 있으며, 이것이 발광층으로서 시뮬레이션에서는 발광원으로 250 nm 깊이에 위치하게끔 설정하였다. 또한 광결정 격자상수를 변화시켜 가면서 계산하였으며, 광결정의 구멍의 직경과 깊이도 변화시켜 보았다. 깊이가 얇으면 발광이 어려우며, 구멍 직경에 따라 발광 파장도 이동하고, 특히 격자상수가 발광 파장의 주요 변수임을 알 수 있었다.

그림 4는 광결정 구조를 시뮬레이션하기 위한 모형으로 GaN 에피층 두께가 4.76  $\mu\text{m}$ 이며, 사파이어기판이 밑 부위에 부착되어 있으며, GaN 기판은 굴절율이 2.54이며, 사파이어기판은 굴절율이 1.62이다. 하부 광결정은 n-GaN층 위에 제작된 것으로 계산하였으며, 광결정과는 1  $\mu\text{m}$  정도 떨어진 상태이다. 상, 하부 광결정사이에 발광원이 놓여 있으며, 광검출의 측정위치는 표면으로부터 상부 쪽 3  $\mu\text{m}$ 에 위치한다.

그림 4는 시뮬레이션의 예로서 격자상수를 260, 265, 270 nm로 변화시키며, 구멍직경과 깊이를 240과 250 nm로 고정시킨 상태에서 계산한 모드이다.

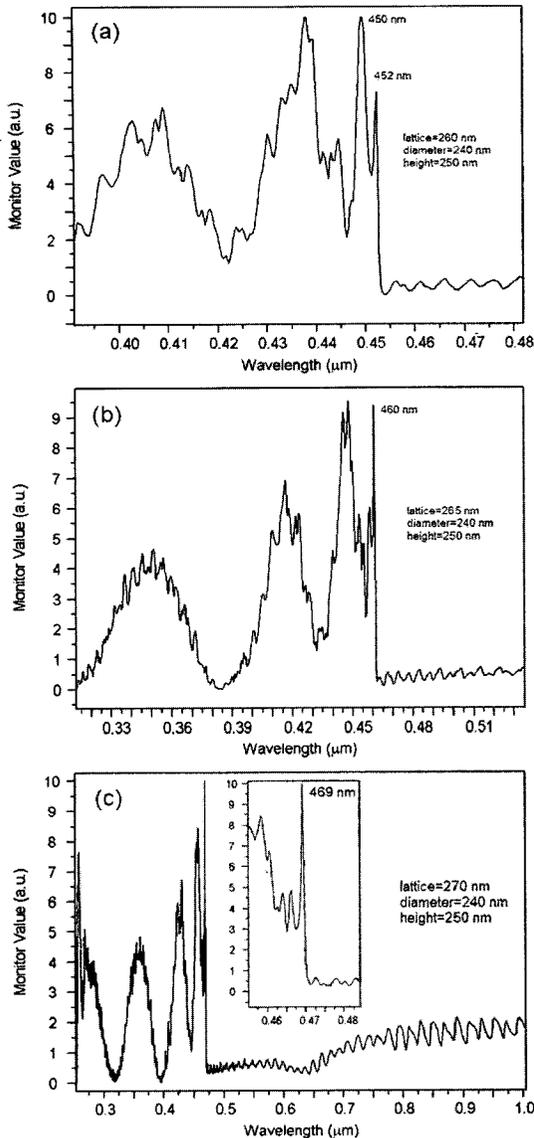


그림 5. 광결정을 포함한 InGaN/GaN MQW 구조에서 격자상수 변화에 따른 발광 파장의 이동 특성.

Fig. 5. Wavelength shift for lasing in various lattice constants in InGaN/GaN MQW structure with photonic crystal nanocavity.

270 nm 격자상수에서는 469 nm 파장에서 발광하며, 265 nm 격자상수에서는 460 nm 파장, 260 nm 격자상수에서는 452 nm 파장에서 발광됨을 알 수 있다. 또한 구멍직경과 깊이에 따라서도 발광 위치가 민감하게 변화함을 알 수 있다.

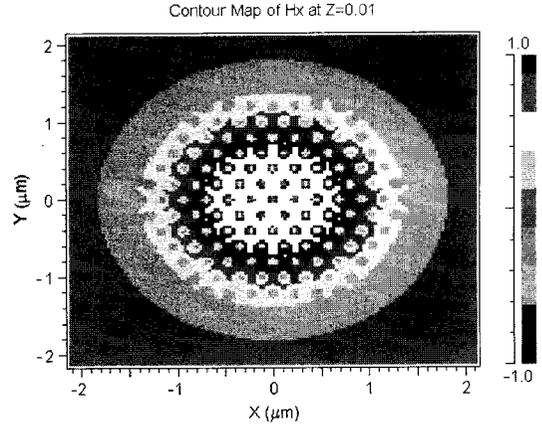


그림 6. 230 nm 격자의 slab 구조를 갖는 광결정 표면에서 10 nm 떨어진 공기 층에서 검출한 광투과 이미지.

Fig. 6. Light transmission image at the distance of 10 nm from the photonic crystal surface with the lattice constant of 230 nm.

그림 6은 그림 5(b)의 경우에 있어서 광결정 표면으로부터 높이  $z=1 \mu\text{m}$ 의 검출위치에서 시뮬레이션한 광 방출세기의 분포도이다. 점광원에서 방출하면서 분산되어지는 형태를 보인다.

이러한 광결정의 밴드 특성 및 투과 특성 그리고, 발광 특성을 확인하기 위해, 청색 InGaN/GaN MQW LED 박막 시료를 성장하고, 또 광결정 구조를 결합함으로써, 이러한 제 특성을 실험적으로 확인하였다.

### 3. 실험

InGaN/GaN 다중 양자우물(multiple quantum well: MQW) LED 구조는 유기금속 화학기상 증착법(metal organic chemical vapor deposition: MOCVD)에 의해서 사파이어 기판위에 성장되었다. 광결정을 형성하는 구멍의 직경은 150 nm로 설정하였으며, 상부 광결정은 4종류인 230, 460, 690 및 920 (또는 345) nm의 격자상수로 제작하였으며, 또한 하부 광결정은 한 종류로 230 nm의 격자상수로만 반복하여 여러 시료를 제작하였다.

그림 7(a)의 상부 광결정을 갖는 LED 제조공정은 다음과 같다. 먼저, 사파이어 기판위에 520°C에서 GaN 완충층을 30 nm 두께로 성장시켰으며, n-type GaN을 1130°C에서 3  $\mu\text{m}$ 의 두께로 증착시

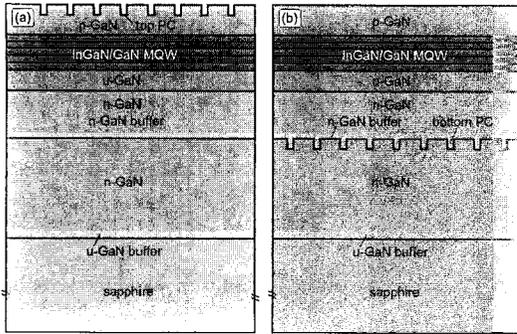


그림 7. (a) 상부 광결정 [14] 과 (b) 하부 광결정 [15]을 갖는 InGaN/GaN MQW LED 구조에 대한 모형도.

Fig. 7. Schematic diagrams of InGaN/GaN MQW LED structures for (a) the sample of top photonic crystals[14] and (b) the sample of bottom photonic crystals[15].

켰다. 그리고 이어서 이러한 박막층 위에 450 nm를 갖는 파장의 청색광을 방출하는 다중 양자우물 구조를 790°C에서 2 nm 높이의 InGaN 양자 우물층(wells)과 8 nm 높이의 GaN 양자 장벽층(barriers)을 교대로 반복하여 5 주기의 MQW 구조로 성장시켰다. 마지막으로 200 nm의 p-type GaN층을 1130°C에서 성장시킨 다음, 활성화하기 위하여 700°C에서 15분간 후속 열처리를 수행하였다[12,13].

이러한 LED 구조를 갖는 광소자의 표면층인 p-type GaN 층에 삼각형 또는 육방격자로 구성된 2 차원 광결정을 격자상수가 230, 460, 690 및 920 nm의 다양한 형태로, 그리고 구멍의 직경은 150 nm로 동일하게 제작하였다. 이러한 광결정 구조의 나노구멍을 형성하는데 있어서, p-GaN층 위에 전자빔 나노리소그래피 공정과 유도결합형 플라즈마(inductively coupled plasma: ICP) 식각공정을 활용하였다. 먼저, 150 nm의 직경과 다양한 주기성을 가지는 원형 나노구멍의 광결정 격자는 질화물 표면위에 도포된 polymethylmethacrylate (PMMA) 층에 형성하였다. 그림 8에서처럼 p-GaN에 원하는 형태의 상부 광결정을 형성하기 위해 PMMA 감광제(photo-resist)를 도포하고, 전자빔 나노리소그래피 장비를 이용하여 PMMA에 전자빔을 이용하여 나노 패턴을 형성하였고, ICP 건식식각장치를 이용하여 5초 동안 p-GaN층을 식각하였다[8]. 최종적으로, PMMA 마스크는 methylisobutyl ketone와

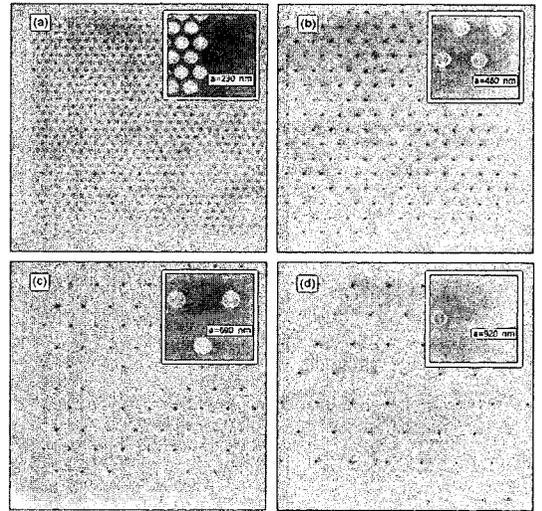


그림 8. E-beam nano-lithography를 이용하여 PMMA에 광결정을 형성한 SEM 사진[8].

Fig. 8. SEM image of photonic crystals on PMMA using by electron beam nano-lithography[8].

isopropyl alcohol 용액에 의해서 현상되어 제거하고, p-GaN에 원하는 상부 광결정 패턴을 제작하였다.

그림 7(b)의 하부 광결정을 갖는 LED 구조는 먼저 520°C에서 MOCVD를 사용하여 사파이어 기판 위에 30 nm 두께로 GaN 완충층을 성장시켰다. 그 위에 1130°C에서 n-GaN층을 2 μm 두께로 증착하는 MOCVD 공정을 수행하였다. 이러한 n-GaN 박막시료에 대해서, n-GaN층 위에 상부 광결정 제조공정과 동일한 방법으로, 하부 광결정 패턴을 제작하였다. n-GaN층 표면에 PMMA photo-resist를 200 nm 두께로 도포한 다음, 구멍직경이 150 nm이고 격자상수는 230 nm를 갖는 광결정 패턴을 500×500 μm<sup>2</sup>의 면적크기에 형성하였다. 물론, 이러한 PMMA photo-resist 패턴은 전자빔 나노리소그래피 공정을 이용하여 제작하였으며, 이어서 n-GaN층 식각은 BCl<sub>3</sub>와 Cl<sub>2</sub>가스를 혼합한 고밀도 플라즈마의 ICP 건식 식각방식으로 10초 (시료 A1) 및 5초 (시료 B1) 동안 나노구멍을 형성하였으며, 남아 있는 잔류 PMMA를 현상하여 제거하였다. 또한, 계속해서 LED 구조를 완성하기 위해 GaN 박막을 추가적으로 MOCVD 공정을 통해 재성장하여 1 μm의 n-GaN을 하부 광결정구조 위에 성장하였으며, 이후의 활성층 박막성장 공정은 상부 광결정 시료의 LED 제작 공정과 동일하게 수행하였다.

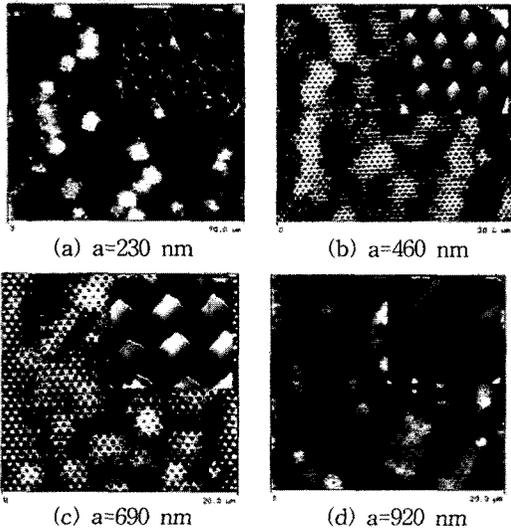


그림 9. 격자상수에 따른 상부 광결정구조의 AFM 사진[9].

Fig. 9. AFM images of top photonic crystals for various lattice constants[9].

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4.1 상부 광결정구조의 광소자

그림 9는 격자상수 230, 460, 690 및 960 nm을 갖는 상부 광결정을 형성한 LED에 대한 원자간 힘 현미경(atomic force microscope: AFM) 사진이다. 광결정의 형상은 구멍의 직경을 150 nm로 하고 구멍과 구멍 사이의 간격인 격자상수를 230 nm로 만든 경우에 있어서, 구멍의 크기에 비해 격자상수가 작아서 ICP 건식 식각이 다소 과도하게 이루어졌다. 평평한 면에 육방격자 또는 삼각격자 모양으로 구멍만이 뚫리는 것이 아니라 구멍과 구멍 사이의 면이 일정부분 식각이 되어 구멍을 가운데 두고 6개의 봉우리가 솟아 있는 형태를 이루게 된다.

이런 형태는 격자상수가 460, 690 및 920 nm로 커질수록 과도하게 식각되는 현상이 다소 줄어들어 평면에 구멍이 광결정 패턴대로 뚫림을 알 수 있다. 하지만 격자상수가 커져도 구멍주위의 요철이 마치 경사진 테이퍼 상태로 식각이 일어나 표면의 윗부분 상반부는 나노막대(nanorod) 또는 나노블럭(nanoblock) 형태를 이루고, 하반부는 나노구멍(nanohole) 형태를 이루고 있다. 격자상수 230 nm인 시료의 경우, 구멍의 평균 직경과 깊이는 각각 150와 28 nm이며, 구멍의 상부 직경과 하부 직경은 각각 223과 108 nm이다.

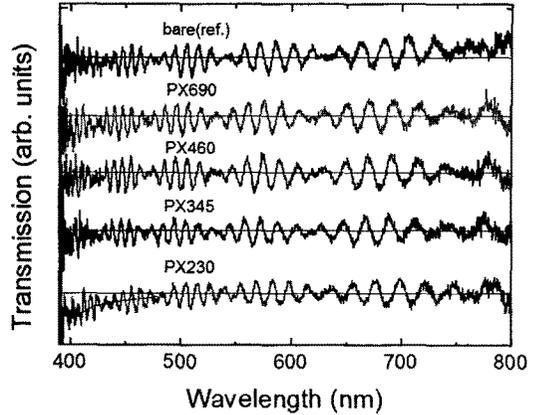


그림 10. 격자상수 변화에 따른 광투과 특성.

Fig. 10. Light transmission spectra for various lattice constants of 230, 345, 460, and 690 nm.

그림 10은 격자상수 변화에 따른 광 투과도를 나타낸다. 할로젠 램프를 시료 표면에 조사하여 광결정 구조를 통과한 다음, 다시 집속시켜 스펙트럼의 세기를 분석하였다. 격자상수가 345, 460, 690 nm인 광결정 구조에서는 광결정 구조가 없는 기준시료와 비교해서 투과율의 변화에 큰 차이를 보이지 않았다. 하지만 격자상수가 230 nm인 경우에는 스펙트럼의 투과율이 다소 낮아지며, 특히 400 nm 영역부근에서 두드러지게 낮아짐을 알 수 있었다. 이는 격자상수 230 nm의 광 밴드 갭에 상관된 파장영역에서 투과를 저하가 일어남을 알 수 있다. 하지만 뚜렷한 큰 차이를 보이지 않아 정성적인 결과만을 제공한다 할 수 있다.

그림 11은 상부 광결정의 다양한 격자상수에 대응하는 PL 발광 스펙트럼을 보여준다. 제작된 시료는 InGaN/GaN MQW 구조로부터 파장이 450 nm인 청색광을 방출한다[16-18]. 또한 PL 발광세기는 격자상수에 따라 큰 차이를 보인다. 특히 광결정의 격자상수가 460 nm인 경우의 시료에서 기준시료보다 두 배로 세기가 증가됨을 알 수 있으며, 230 nm인 경우에는 기준시료보다 세기가 줄어드는 현상을 보이며, 빛이 광결정 층을 통과하여 나오질 못하였다. 이는 광 밴드 갭(photonic band gap)의 영향으로 사료되며, 시뮬레이션 결과와 잘 일치됨을 알 수 있었다.

또한 격자상수가 690 nm, 또는 920 nm로 점점 커짐에 따라, 광결정 구조에 의한 발광세기의 효과는 줄어들며, 광결정을 형성하지 않은 기준시료의

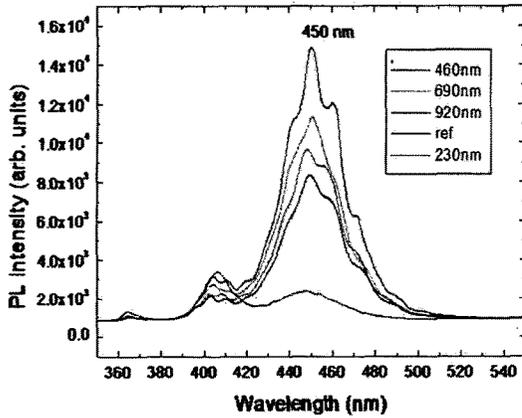


그림 11. 격자상수 변화에 따른 발광 특성[6,14].  
 Fig. 11. Photoluminescence spectra for various lattice constants of 230, 460, 690, and 920 nm[6,14].

발광세기로 같아지는 수렴현상을 볼 수 있었다. 광결정 시료에서 PL 발광세기가 증가하는 현상은 비교적 굴절률이 높은 반도체 표면에서 빛이 전반사되지 않도록 표면에 공기의 나노구멍을 형성하여 주기적으로 굴절률을 변화시킨 결과이며, 이로써 빛의 외부 양자효율을 증대시켰기 때문이다[19]. 또한 격자주기와 발광 파장의 주기가 보강간섭을 일으킬 수 있는 범위에서 광결정 구조가 형성되었기 때문이다. 이러한 광결정 특성은 PL 발광 뿐만 아니라, 전기발광에서도 가능한지 확인하기 위하여 LED 제조공정을 수행하였다.

먼저 n-GaN층에 전극을 형성하기 위해 1 μm 깊이로 ICP 식각공정을 수행하였으며, 다시 lift-off 포토공정을 수행하여 p-GaN, n-GaN층에 Cr/Ni/Au 금속접촉층을 증착하여 전극 패턴을 제작하였다. 이렇게 웨이퍼 상에 제작된 LED 칩 표면 위에 상부 광결정 구조를 패터닝하여 제작하였다. 칩과 칩 사이는 전기적으로 분리된 wafer-on-chip 상태이며, 단일 칩으로 분리만 하지 않은 상태이다.

그림 12는 InGaN/GaN MQW LED 구조에서의 칩에서 전기발광 특성을 나타낸다. 텅스텐 팁으로 3.2 V의 순방향 바이어스를 인가하였다. 광의 세기가 격자상수에 따라 달라짐을 알 수 있으며, 이는 그림 11의 PL특성과도 잘 일치함을 알 수 있다. 따라서 PL 및 EL로부터 광 밴드 갭의 존재를 실험적으로 확인하였다.

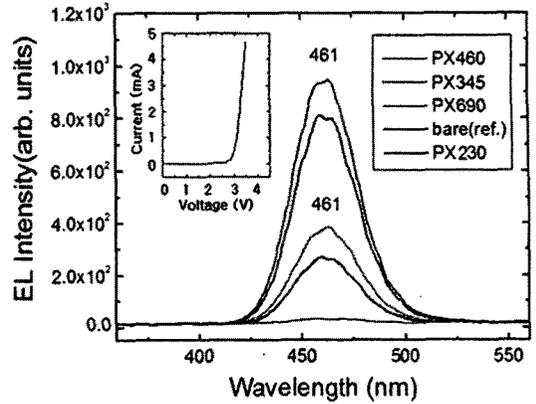


그림 12. 상부 광결정의 격자상수가 230, 345, 460, 690 nm로 변화하는데 따른 발광 특성[9].  
 Fig. 12. Photoluminescence spectra from top photonic crystals with various lattice constants of 230, 460, 690, and 920 nm[9].

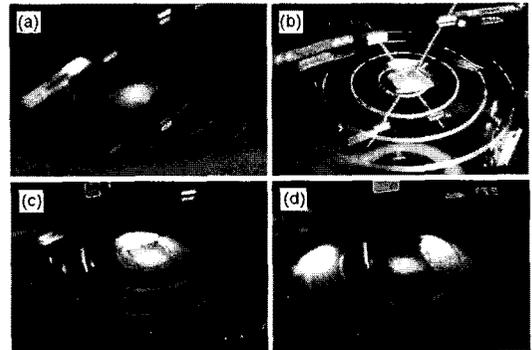
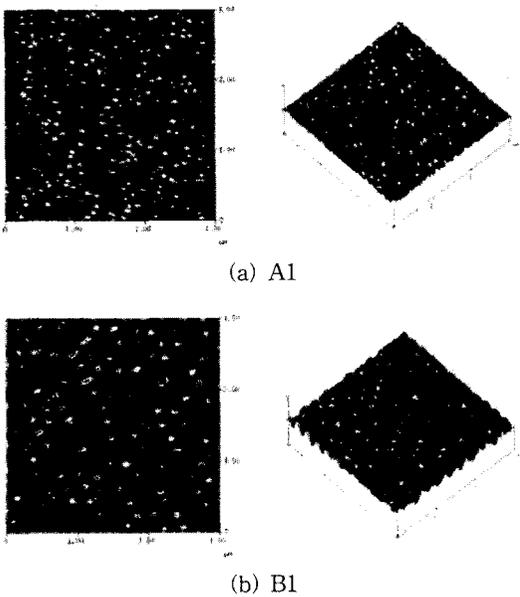


그림 13. 상부 광결정을 갖는 LED의 전기발광 사진.  
 Fig. 13. EL spectral images from LEDs with top photonic crystals.

그림 13은 상부 광결정을 갖는 LED의 전기발광 이미지로 육안으로 발광특성을 확인할 수 있다. 격자상수가 커짐에 따라 광결정이 없는 경우로 수렴되어지며, 광결정의 격자상수가 460 nm, 230 nm에서 각각 최대, 최소의 광투과 현상을 보인다.

#### 4.2 하부 광결정구조의 광소자

그림 14는 n-GaN층에 PMMA photo-resist를 도포하여 전자빔 리소그래피공정을 수행한 다음,



(a) A1

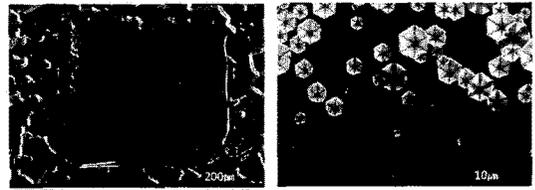
(b) B1

그림 14. (a) 광결정이 형성되지 않고 표면조도를 갖는 n-GaN 시료와 (b) 하부 광결정이 형성된 시료의 AFM 사진[15].

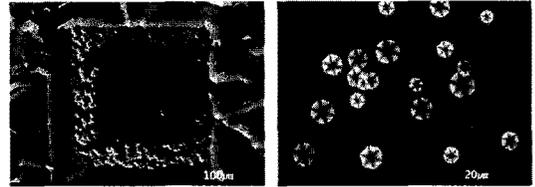
Fig. 14. (a) AFM images of roughen surface sample on n-GaN and (b) the sample with bottom photonic crystals patterned on n-GaN surface[15].

ICP 식각공정을 통하여 광결정을 제작하였다. 비교적 식각시간이 길어, 포토레지스트 마스크가 남지 않음으로써, 하부 광결정이 형성되어지지 않고 불규칙적인 표면조도로 파잉 식각된 경우(시료 A1)와 식각시간이 비교적 짧아 포토레지스트 마스크가 남은 상태로 격자상수 230 nm의 하부 광결정이 형성된 경우(시료 B1)에 대한 AFM 사진이다. ICP 식각공정을 10초간 수행한 A1 시료의 경우는 표면의 광결정 형상이 제거되고 파잉 식각되어 표면의 거칠기가 무작위 형태로 나타난다. 한편, 5초간 식각된 B1시료는 비교적 양호한 광결정을 보이지만 나노구멍 깊이는 약 10 nm 정도로 매우 얇게 형성되었다.

그림 15는 n-GaN에 형성된 표면조도가 거칠어진 시료 (A1)와 광결정이 형성된 시료(B1)에 LED 구조를 재성장시킨 경우의 SEM 사진이다. MOCVD를 이용하여 LED 구조를 성장할 때, 재성장함에 있어서, 전체적인 GaN의 박막성장이 충분히 잘 이루어지지 않은 것을 볼 수 있다. 하지만



(a) A2



(b) B2

그림 15. (a) 하부 광결정이 형성되지 않고 불규칙한 표면조도를 갖는 시료에 성장시킨 full LED의 SEM 사진 (b) 하부 광결정이 형성된 시료에 성장시킨 full LED의 SEM 사진.

Fig. 15. (a) SEM images of the regrown LED sample on the n-GaN with roughen surface and (b) the sample on the n-GaN with bottom photonic crystals.

조도시료의 표면조도가 거칠어진 부분에서도 광결정이 형성된 시료의 부분에서처럼, 재성장된 GaN 부분이 다른 곳과 비교하여 양호하게 성장된 것을 보여준다. 이는 표면 나노구조나 광결정 구조가 GaN 성장에 결정질을 향상시켰음을 의미한다.

그림 16은 하부 광결정이 형성되지 않고 표면에 조도를 갖는 n-GaN층 위에 성장된 LED 구조(시료 A1)와 구멍의 직경이 150 nm이고 230 nm 격자상수의 하부 광결정 위에 성장된 LED 구조(시료 B1)로부터 발광하는 PL 특성을 보여준다. 하부 광결정이 없는 A1 시료의 표면조도 부위에 형성된 LED구조로 부터는 504 nm의 청록색 밴드와 567 nm의 장파장을 갖는 녹색광이 발광되었다. A1 시료의 표면조도가 없는 부위의 기준시료로부터는 444 nm의 단파장 청색과 567 nm의 녹색파장의 밴드가 발광하였다. 하지만 B1시료의 기준시료는 A1 시료의 기준시료와 동일한 특성을 갖지만, B1시료의 하부 광결정 부위에서는 394 nm의 청자색 파장이 발광하였다. 또한 567 nm의 녹색 발광은 A1 시료와 동일하였다.

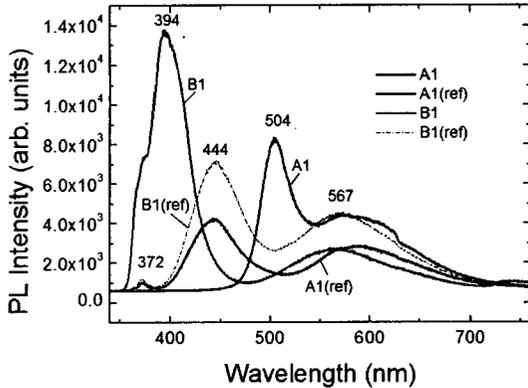


그림 16. 하부 광결정을 갖는 LED의 PL spectra[15].  
 Fig. 16. PL spectra from bottom photonic crystal LEDs[15].

이러한 567 nm 장파장의 발광은 하부 광결정이 형성된 부위에서도 같은 발광특성을 보이며 기준면과 동일함을 보였다. 즉, 재성장한 LED의 모든 시료에서 장파장의 피크가 있는 것으로 봐서 이 발광은 아마도 n-GaN층위에 재성장의 경우에 있어서 GaN 완충층을 다시 형성함에 따른 결정질의 전위(dislocation)에 관련된 발광특성으로 사료된다.

표면조도가 거칠어진 시료는 양자 우물 층의 발광 파장이 기준시료인 A1(ref.)에 444 nm로부터 504 nm의 장파장으로 적색천이(red-shift) 하였고, 하부에 광결정을 형성한 시료의 경우에는 기준시료인 B1(ref.)의 444 nm 파장에서 394 nm의 파장으로 청색천이(blue-shift) 하는 것을 보인다. 이러한 반대방향으로 천이는 매우 흥미로운 결과를 주며, 특성평가를 필요로 한다. 또한 두 경우 모두 발광 세기가 증가하는 것을 볼 수 있다. 특히 나노구조의 표면조도를 갖는 경우의 기판과의 격자부정합이 줄어들 수 있기 때문에 결정질의 형성에 있어서 In 함량의 변화로 인하여 band gap의 변화가 예상되며, 장파장으로의 red shift는 요철의 표면상에 양자점 유사구조(quantum dot-like feature)의 형성에 의한 국소화 상태(localized state)의 원인으로 예상되어진다.

그림 17은 n-GaN층에 표면조도가 커진 시료(A1)와 하부 광결정 위에 성장된 LED구조 시료(B1)에 대한 Micro-Raman 분광특성을 나타낸다. 두 시료 모두에서 LED구조의 Ga-N의 원자결합에 관련된 566  $\text{cm}^{-1}$ 의 피크가 주위의 기준 부위에서

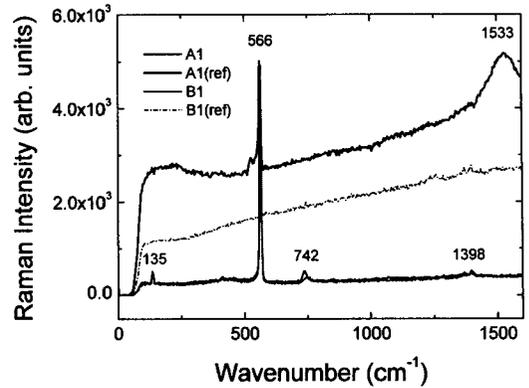


그림 17. 하부 광결정 위에 성장한 LED구조의 Micro-Raman spectra[15].  
 Fig. 17. Micro-Raman spectra of full LED structures[15].

보다 훨씬 큰 세기를 보임을 알 수 있다. 광결정이 없는 A1와 광결정이 형성된 B1시료의 피크의 정확한 위치는 567.5 와 569.5  $\text{cm}^{-1}$  이다. 또한 135  $\text{cm}^{-1}$ 의 미세피크와 742  $\text{cm}^{-1}$ 의 피크도 보여 결정질이 표면조도나 하부 광결정으로 인해 In 함량을 갖는 InGaN 결정층의 성장이 향상됨을 알 수 있었다.

Ga-N 라만피크의 위치이동은 격자평면의 변형을 변화에 비례하는데, 대략 3.35  $\cdot 10^{-3}$ 의 변형율을 주며, 이는 GaN 결정의 영률(Young's modulus)이 150 GPa와 포와송비(poison's ratio)가 0.38에 대해서 압축성 응력(compressive stress)은 0.502 GPa이다. 이러한 스트레스는 사파이어기판과 GaN 박막사이의 격자부정합에 기인된다. 또한 이러한 큰 스트레스 영향은 하부 광결정위에 박막성장을 수행함으로써 In 조성함량 및 성장 모드의 변화에 영향을 끼침을 알 수 있다. 하부 광결정구조의 격자상수를 변화시켜 발광특성을 추가 확인하였다.

그림 18은 하부 광결정을 삽입하여 nanocavity를 형성한 InGaN/GaN MQW 광소자 구조 모형이다. 하부 광결정 구조는 격자상수가 230, 345, 460, 960 nm를 갖는 나노구멍의 패턴을 형성하였으며, 그 위에 양자우물구조를 성장하였다.

그림 19는 다양한 하부 광결정을 양자우물층 아래부위에 nanocavity로 삽입된 InGaN/GaN MQW 광소자로부터의 발광특성이다. 주 PL 발광파장은 402-415 nm 영역이고, InGaN/GaN MQW 활성층의 In 함량비율이 0.1로 비교적 적게 함유된 InGaN 양자우물이 형성되었다. 이는 비교적 자외선쪽으로

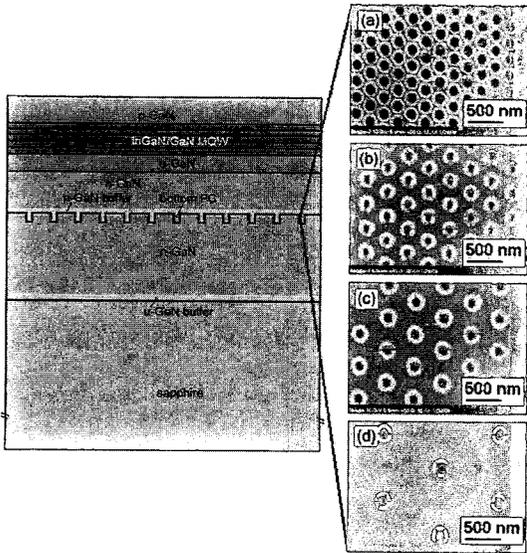


그림 18. 다양한 하부 광결정을 삽입한 InGaN/GaN MQW 광소자 구조 모형도.

Fig. 18. Diagram of InGaN/GaN MQW LED structure with the inclusion of various bottom photonic crystal structures.

치우친 단파장 PL를 제공한다. 또한 GaN층의 밴드-밴드 exciton 피크가 366 nm 에서 보인다.

또한 Fabry-Perot 간섭으로 발광세기가 심하게 요동하는 현상이 파장 468 nm 영역 주위에 나타난다. 이러한 468 nm 대역 스펙트럼은 비교적 발광세기가 약한 영역이지만, 활성층 하부의 광결정 nanocavity 구조는 468 nm 영역에서 발광하는 양자점(quantum dots) 현상을 보고 있다[20].

이러한 하부 광결정 위에 박막 성장에 따른 성장 변수의 변화가 커서 예측하는데 어려움이 따른다. 또한 양자활성층의 In 함량의 조성비를 제어할 수 있는 결정성장 공정변수를 확보할 필요가 있다. 따라서 추가적인 실험에서 더욱 양자우물 활성층의 발광 파장과 발광에 필요한 광결정 격자상수를 일치시킴으로써 발광세기를 더욱 향상시킬 수 있으리라 사료된다. 차후에는 이러한 발광위치를 고려하여 양자우물층의 상, 하부에 광결정구조를 쌍으로 삽입한 구조를 설계하여 광소자를 제작하려 한다.

### 5. 결론

본 연구에서는 전자빔 나노리소그래피 공정을 이용하여 청색 발광소자 구조의 상부와 하부에 광

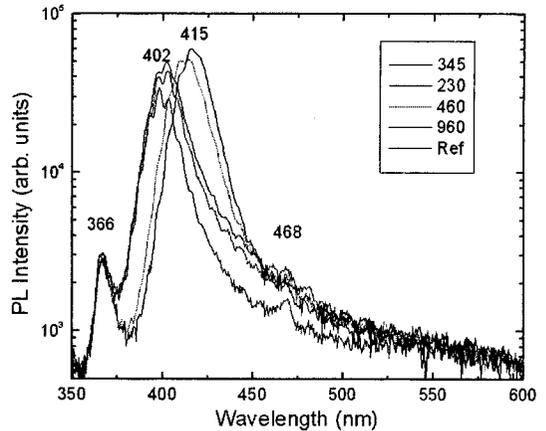


그림 19. 활성층 상/하부에 광결정을 삽입한 InGaN/GaN 다중양자우물 광소자로부터의 발광 특성.

Fig. 19. PL spectra from InGaN/GaN MQW LED structure with the inclusion of top and bottom photonic crystal structures.

결정 nanocavity을 형성함으로써 지금까지 연구한 광결정 발광특성을 review 하였다. PL 발광특성이 상부 광결정의 격자상수에 따라 발광세기가 변화되며, 특히, 청색 450 nm 파장에 대해 광결정 격자상수가 230 nm로 형성됨에 따라 광 밴드 갭 특성을 보이고 발광세기가 약해짐을 알 수 있었다. 또한, 460 nm 격자상수를 갖는 광결정 구조에서는 발광세기가 배가됨도 확인하였다. 이러한 광 밴드 갭 현상은 전기 발광 특성으로부터도 재확인 되었다. 하부 광결정 구조를 형성한 다음, 그 위에 LED 박막구조를 형성한 경우, 조사한 PL 발광특성으로부터 하부 광결정이 결정성장에 있어서 사파이어기판과 GaN 박막 사이의 격자부정합에 따른 전위형성으로 인해 영향을 받을 수 있었다. 특히 PL 피크가 444 nm 에서 394 nm로 이동되는 현상을 보이며, Micro-Raman 특성으로부터 135  $\text{cm}^{-1}$ 의 피크가 형성되고, In 함량을 포함하는 InGaN 박막층의 피크 이동이 생김을 알 수 있었다. 또한 AFM 이미지 분석결과, 상부 p-GaN와 하부 n-GaN의 광결정이 양호하게 형성되었음을 알 수 있었으며, 광 밴드구조와 광 투과특성에 대한 시뮬레이션이 비교적 실험결과 잘 일치됨을 확인하였다.

### 감사의 글

본 연구는 한국학술진흥재단의 지역대학 우수과 학자 (KRF-2007-521-D00188) 연구지원에 의해 수

행한 것임. E-beam nanolithography 공정은 KAIST Nanofab 센터에서 수행되었으며, SEM 및 AFM은 한국기초과학지원연구원(KBSI) 전주분소에서 측정되었음.

### 참고 문헌

- [1] J. Park, J. K. Oh, K. W. Kwon, Y. H. Kim, S. S. Jo, J. K. Lee, and S. W. Ryu, "Improved light output of photonic crystal light-emitting diode fabricated by anodized aluminum oxide nano-patterns", *IEEE Photon. Technol. Lett.*, Vol. 20, No. 4, p. 321, 2008.
- [2] M. Borodisky, T. F. Krauss, R. Coccioli, R. Vrijen, R. Bhat, and E. Yablonovitch, "Light extraction from optically pumped light-emitting diode by thin-slab photonic crystals", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 75, No. 8, p. 1036, 1999.
- [3] S. Fan, P. R. Villeneuve, and J. D. Joannopoulos, "High extraction efficiency of spontaneous emission from slabs of photonic crystals", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 78, No. 17, p. 3294, 1997.
- [4] M. Imada, S. Noda, A. Chutinan, and T. Tokuda, "Coherent two-dimensional lasing action in surface-emitting laser with triangular-lattice photonic crystal structure", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 75, No. 3, p. 316, 1999.
- [5] C. S. Kee, J. E. Kim, H. Y. Park, S. J. Kim, H. C. Song, Y. S. Kwon, N. H. Myung, and S. Y. Shin, "Essential parameter in the formation of photonic band gaps", *Phys. Rev. E*, Vol. 59, No. 4, p. 4695, 1999.
- [6] I. G. Lee, K. Kim, S. C. Jeon, K. S. Kim, and K. M. Lee, "Nanophotonics of hexagonal lattice GaN crystals fabricated using an electron beam nanolithography process", *Intern. J. Prec. Eng. and Manufac.*, Vol. 7, No. 4, p. 14, 2006.
- [7] M. Fujita, S. Takahashi, Y. Tanaka, T. Asano, and S. Noda, "Simultaneous inhibition and redistribution of spontaneous light emission in photonic crystals", *Science*, Vol. 308, p. 1296, 2005.
- [8] J. Choi and K. Kim, "Fabrication of nano-photonic crystals with lattice constant of 460-nm by inductively-coupled plasma etching process", *J. Semicon. Display Equip. Technol.* (Korean), Vol. 5, No. 2, p. 1, 2006.
- [9] K. Kim, J. Choi, J. B. Park, S. C. Jeon, J. S. Kim, and H. M. Lee, "Lattice constant effect of photonic crystals on the light output of blue light-emitting diodes", *IEEE Photon. Technol. Lett.*, Vol. 20, No. 17, p. 1455, 2008.
- [10] E. Yablonovitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 58, No. 20, p. 2059, 1987.
- [11] G. R. Yi, J. H. Moon, and S. M. Yang, "Photonic crystals for controlling the light", *News Inform. Chem. Eng.*, Vol. 23, No. 4, p. 446, 2005.
- [12] S. Nakamura and G. Fasol, "The blue laser diode: GaN based light emitters and lasers", (Springer, Berlin) p. 203, 1997.
- [13] K. Kim and S. J. Chung, "The Mg solid solution for the p-type activation of GaN thin films grown by metalorganic chemical vapor deposition", *Trans. Electr. Electron. Mater.*, Vol. 2, No. 4, p. 24, 2001.
- [14] K. Kim, J. Choi, S. C. Jeon, J. S. Kim, and H. M. Lee, "Photonic crystal effect on light emission from InGaN/GaN multi-quantum-well structures", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 90, No. 18, p. 181115, 2007.
- [15] K. Kim, "Nanopatterned surface effect on the epitaxial growth of InGaN/GaN multi-quantum well light emitting diode structure", *Trans. Electr. Electron. Mater.*, Vol. 10, No. 2, p. 40, 2009.
- [16] G. S. Shin, S. W. Hwang, and K. Kim, "Time-resolved photoluminescence measurement of Frenkel-type excitonic lifetimes in InGaN/GaN multi-quantum well structures", *Trans. Electr. Electron. Mater.*, Vol. 4, No. 5, p. 19, 2003.
- [17] K. Kim, "Inclusion of silicon delta-doped two-dimensional electron gas layer on multi-quantum well nano-structures of blue light emitting diodes", *Trans. Electr. Electron. Mater.*, Vol. 5, No. 5, p. 174, 2004.

- [18] K. Kim, J. Y. Lee, and S. C. Jeoung, "Lifetime enhancement of the exciton in a trapezoidal-type InGaN/GaN multi-quantum well structure", *Thin Solid Films*, Vol. 478, Issues 1-2, p. 286, 2005.
- [19] K. Kim, J. Choi, M. Jung, and D. H. Woo, "Enhanced Fabry-Perot interferences from nanoporous surfaces of GaN thin films patterned by anodic alumina templates", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 47, p. 6354, 2008.
- [20] K. Kim, "Quantum dot formation and photoluminescence from bottom photonic crystals of nanopatterned GaN thin films", to be submitted to *J. Appl. Phys.*, 2009.