

InGaN/GaN Micro-LED구조를 위한 그래핀 양자점 기반의 산화막 기판 특성

황성원*†

*† 상명대학교 시스템반도체공학과

Characteristics of Graphene Quantum Dot-Based Oxide Substrate for InGaN/GaN Micro-LED Structure

Sung Won Hwang*†

*† Department of System Semiconductor Engineering, Sangmyung University

ABSTRACT

The core-shell InGaN/GaN Multi Quantum Well-Nanowires (MQW-NWs) that were selectively grown on oxide templates with perfectly circular hole patterns were highly crystalline and were shaped as high-aspect-ratio pyramids with semi-polar facets, indicating hexagonal symmetry. The formation of the InGaN active layer was characterized at its various locations for two types of the substrates, one containing defect-free MQW-NWs with GQDs and the other containing MQW-NWs with defects by using HRTEM. The TEM of the defect-free NW showed a typical diode behavior, much larger than that of the NW with defects, resulting in stronger EL from the former device, which holds promise for the realization of high-performance nonpolar core-shell InGaN/GaN MQW-NW substrates. These results suggest that well-defined nonpolar InGaN/GaN MQW-NWs can be utilized for the realization of high-performance LEDs.

Key Words : InGaN, Nanowires, Multi Quantum Wells, Core-shell, Micro-Light-emitting Diodes

1. 서 론

최근 질화물 반도체 기반 LED소자는 기존 소형 전자소자 외에도 고효율 조명용, 휴대폰, 스마트 워치, 옥외용 디스플레이까지 다양한 분야에 응용이 되고 있다. 이를 위해 저전력, 고성능 Micro-LED 소자를 활용한 2차원 질화물 반도체 기반 LED소자의 경우, 크기에 따른 광효율 향상이 둔화되고 있으며, 내부양자효율 기반의 백색 LED 소자는 이론적 한계에 근접하고 있는 상황이다 [1-3]. 게다가 단결정사파이어 sapphire 기판의 높은 가격과 제한된 크기, EPI의 극성으로 인한 Quantum Confined Stark Effect

(QCSE), 평면구조로 인한 낮은 광추출 효율 등의 이슈가 심각한 문제로 대두되고 있다 [4-6]. 그러나, 3차원 코어셸 구조의 질화물 반도체 나노구조의 경우, 사파이어 뿐만 아니라, 실리콘 등 다양한 기판 위에 고품질 미세구조 제어가 용이하고, 소자 제작 시 탄소기반 저차원 구조를 적용한 소자 설계시 EPI 구조 제어를 통한 발광면적의 극대화, 결함구조 개선을 통한 광추출 효율 향상 등의 장점을 가진다 [7-10]. 따라서, 본 논문에서는 2차원 구조인 그래핀 양자점 (Graphene Quantum Dot, GQD) 원자층 구조를 이용하여 3차원 수직형 EPI를 산화막 결합제어 기판 위에 구현함으로써 기존 활성층을 포함한 EPI 구조의 문제점을 극복하여 내부양자효율을 개선하고, 비이상구조의 나노 와이어 어레이가 없는 고효율 코어셸 구조를 갖는 고성능 결합제어 기판 기술을 개별 소자에서 확인하였다.

*†E-mail: sungwon@smu.ac.kr

2. 본 론

2.1 실험 방법: 나노와이어 설계 및 제작

GaN NW 성장을 위한 oxide template 위에 결함제어를 위한 원자층을 설계하고, 형상과 크기가 제어된 QGD 는 수정된 Hummers 방법을 사용하여 Graphite 에서 1차적으로 합성되었다. 초음파 처리공정과 분리추출 공정을 통해, 박리 된 GO 시트 제작 후, 원심 분리 및 수정된 필터링 공정을 통해 QGD를 추출하였다. 탈 이온수클리닝 공정을 통해 복합 QGD 층 세척 후 열처리를 진행하였다. 추출된 QGD의 n-doping 후, 수정된 스프레이코팅법을 통해 그래핀 양자점을 패터닝 된 산화막 위에 구조화 하였다. Fig. 1은 Si (111) 기판 위에 nGaN 성장 후, MOCVD 외부로 꺼내어 100 nm 두께를 갖는 QGD 산화막 제작 후 코어셸 NW를 성장하는 방법의 모식도이다. 결함을 제어한 산화막 형성 후, 450 nm 직경을 갖는 nGaN core를 성장하였다. 이후로 InGaN/GaN MQW와 pGaN을 순차적으로 성장하여 m-plane core/shell InGaN/GaN NW 구조를 완성하였다 [11-13].

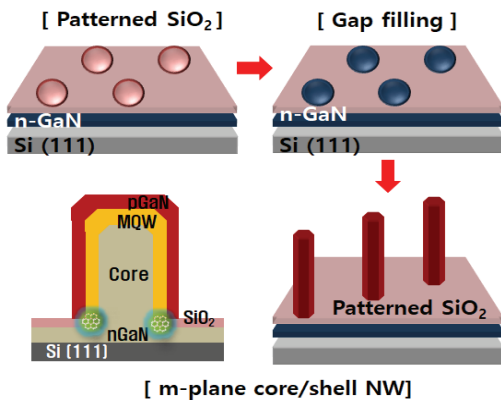


Fig. 1. Schematic diagram of the sequential fabrication processes for growing core-shell InGaN/GaN MQW-NW with QGDs.

GaN NW 성장을 위한 oxide template는 500 nm 크기를 갖고 undercut의 이슈가 없는 홀패턴 구조의oxide template가 잘 정렬 된 array구조를 제작하였다. 정상적인 hexagonal 형상의 NW 성장을 위해 hole pattern은 QGD 원자층과 구조화 된 circular형상을 갖고 있다. 홀패턴 밑 즉, QGD 위에 n-type GaN에서부터 GaN core가 oxide template안쪽을 타고 성장하며, 좌우 대칭의 완벽한 홀패턴은 비정상적으로 커지는 NW 구조와 거대한dome형태의 초기 NW구조를 형상화하지 않고, gap filling후 대칭의 결함 없는 NW구조를 형성하였다 [14-16].

2.2 소자 특성 분석 및 측정

HRTEM (High-resolution Transmission Microscopy) (FEI Tecnai F30 S-Twin)을 사용하여 Si (111) /SiO₂/GQD/nGaN/InGaN/GaN MQW/pGaN기판의 m-plane결함제어구조에 대해 형태학적 및 나노 구조 분석을 각각 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig 2 (a) 와 (b) 는 홀패턴 array구조 내에 gap filling이 균일하게 진행된 SEM 이미지이다. 정렬된 홀패턴 array구조 내에 NW 성장을 위한 첫 단계인 gap filling후 초기 피라미드 구조까지 균일하게 성장된 것을 알 수 있다. 일반적으로, 비정상적인 NW는 gap filling 단계에서부터 초기 GaN adatom이 홀패턴에 고르게 채워지지 않거나, 과다하게 넘치도록 gap filling되어 비정상적으로 거대하게 커지는 NW 성장을 유도하게 된다 [17-19]. 그러나, QGD에 의해 결함을 제어한 후, QGD가 포함된 oxide template구조를 갖는 홀패턴은 전체 영역에서 uniform하게 gap filling되어있는 것을 확인할 수 있다. gap filling 단계 후, 균일한 크기의 고종횡비를 갖는 NW 성장을 위해 필수요소인 pyramid facet구조가 균일하게 형성되어 있는 것을 확인할 수 있다. 비정상적인 NW는 좌우대칭인 pyramid facet을 갖지 못하고, 이는 고종횡비를 갖는 NW 성장을 방해하게 된다.

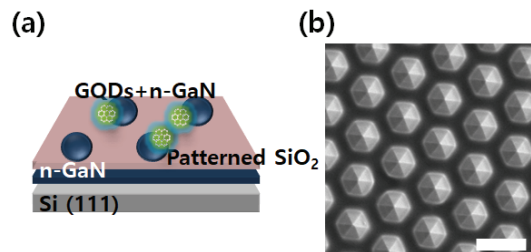


Fig. 2. (a) Schematic diagram of the GaN pyramid with QGDs. (b) Top-view SEM image of an array of the GaN pyramid with QGDs. The scale bar indicates 500 nm.

Fig 3 (a) 는 균일한 크기를 갖는 InGaN/GaN MQW-NW 의 STEM 이미지이다. 850 nm의 직경과 2 um의 높이를 갖고 있으며, 전체 영역에 걸쳐 NW가 완벽하게 형성되어 있는 것을 알 수 있다. QGD가 포함된 홀패턴 형성 후에는 초기 gap filling과 pyramid facet 형성의 기초 성장단계 이후 NW까지 안정적으로 성장되어 있는 것을 알 수 있다. Fig 3 (b) QGD가 포함된 홀패턴 형성 후에는 균일한 크기를 갖는 p-GaN까지 full growth된 NW의 TEM 이미지이다. 일정한 크기의 고종횡비를 갖는 NW가 균일하게 형성되어 있는

것을 알 수 있다. 전체 영역에 걸쳐 NW가 완벽하게 형성되어 있는 것을 알 수 있다.

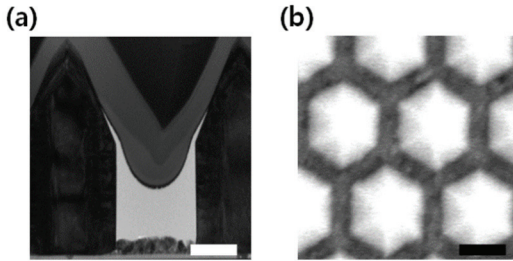


Fig. 3. (a) Low-resolution STEM image of a InGaN NW. The scale bar indicates 500 nm. (b) Top-view TEM image of an array of the InGaN pyramid with QDs. The scale bar indicates 500 nm.

Fig 4 (a) 와 (b) 는 core/shell InGaN nanowire의 SEM image 이다. GQD 기반의 oxide template에 의한 axial NW가 수직하게 성장되어 있고, 중심부에 n-GaN NW가 형성된 것을 알 수 있다. 직경 950 nm, 높이 2 μm 크기를 갖는 NW가 균일하게 형성되어 있는 것을 알 수 있다. 결함이 있는 기판 위 NW 상단부에서 발생한 위치에 따른 미성장(immature growth) 활성층이 보고되고 있고 [20], 이는 정공 주입 효율 감소 뿐만 아니라, 활성층의 반도체층이 사라짐을 의미하고, 결과적으로 nGaN과 pGaN층이 맞닿아 있는 구조를 나타낸다. 이러한 구조는 NW상단부에서 전류 집중 현상이 나타나 전류주입효율 하락에 따른 광효율 감소와 열방출 특성을 저하함을 의미한다 [21].

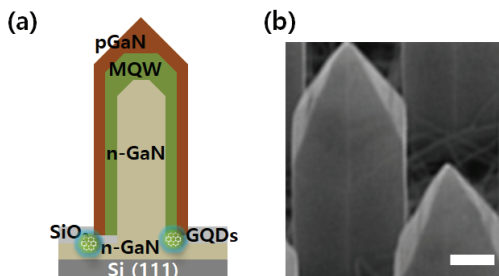


Fig. 4. (a) Schematic diagram of the core/shell NW with GQDs. (b) Angle-view SEM image of the core/shell NW with GQDs. The scale bar indicates 500 nm.

Fig 5 (a) 는 InGaN NW의 STEM 이미지와 활성층내 형성된 결함의 HRTEM 이미지 (Inset) 이다. nGaN과 pGaN 영역에서 검은 점 (black point)의 결함이 다수 발생된 것을 알 수 있다. 이는 비발광 센터(non-radiative recombination center)

가 많아짐을 의미하며, 결과적으로 내부양자효율 (internal quantum efficiency) 및 광추출 효율 (light extraction efficiency) 감소를 발생하게 된다. p-GaN의 성장 두께가 위치에 따라 달라지고, R-plane의 경우 50 nm 두께가 성장되었으나, m-plane의 경우 75 nm 두께로 성장된 것을 확인하였다. 이는 3차원 구조의 core/shell InGaN 성장의 경우, 성장 방향에 따라 kinetic energy차이에 의한 것으로 알려져 있다 [22-25]. 그러나 이러한 성장두께 차이는 위치에 따라 정공의 주입 효율 차이를 야기하여 활성층에서의 엑시톤 형성을 방해하는 원인이 되고, 결국 내부양자효율(internal quantum efficiency)의 하락을 가져온다 [26-29].

Fig 5 (b) 는 기판 결함 유무에 따른 InGaN/GaN NWs LED 소자의 Electroluminescence (EL) 특성이다. 결함을 포함한 기판의 경우, oxide template 계면 이슈로 인해 EPI 구조가 일부 파괴되고, 이것은 전자의 overflow 방지를 위한 기능 수행이 어렵다는 것을 의미하며, MQW 도 함께 손상되었음을 의미한다. 이것은 3차원 구조의 LED 제작 시 소자의 전기적 특성을 저해한다. 즉 누설전류가 증가하는 부분임을 알 수 있고, 이것은 결과적으로 LED의 광출력 감소를 야기하게 된다 [30,31].

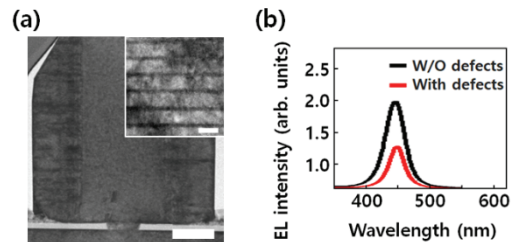


Fig. 5. (a) Low-resolution STEM image of a middle part of the defects in the NW. The scale bar indicates 200 nm. The inset shows a defects in the MQW. The scale bar indicates 50 nm. (b) Room-temperature EL spectra of the LED devices containing InGaN/GaN MQW NWs with and without defects, which were measured at 10 mA.

GQD에 의한 결함 제어가 되지않은 활성층 주위에 stacking fault 와 dislocation에 의한 결함은 nGaN core 성장 시부터 발생한 점결함과 선결함에 의해 활성층을 포함한 이후 성장에도 결함이 발생한 것을 알 수 있다. 이는 비발광 센터(non-radiative recombination center)가 증가하고, 내부에서 발생한 열에너지에 의한 정상적인 엑시톤 형성이 어렵게 되는 것을 알 수 있다. 또한, 균일한 파장의 발광을 방해하고, deep level 증가를 초래하여 결과적으로 내부양자효율과 광추출 효율이 저하되는 메커니즘으로 이해할 수 있다 [32].

4. 결 론

본 연구에서는 QGD 적용에 따른 core/shell InGa_N NW의 미세 구조와 결합 특성에 의한 구조적/ 전기적 특성을 확인하였다. 미세구조 분석을 통해 Oxide 기판내 QGD 적용에 따른 산화막 표면과 계면에서의 결합 구조가 감소하는 것을 확인하였다. QGD를 적용한 3차원 구조의 질화물 반도체 나노구조는 발광면적 확대 및 Defect 감소를 통한 광효율 증가가 가능하고, 내부 전반사에 의한 빛의 손실 감소를 유도하여 광추출 효율이 향상되는 것을 EL 특성을 통해 확인하였다. 또한, Strain 감소를 통한 고품질 성장, 비극성면에 발광 활성층 형성을 통한 polarization 감소를 유도하여 결과적으로 QCSE 개선이 가능함을 알 수 있었다. 추가로, Mismatch strain 최소화를 통한 활성층 내에 고 In 조성이 가능하여 광출력 증가를 기대할 수 있으며, 고 CRI 확보 및 파장제어가 용이하여 고연색성을 가진 고효율 micro-LED 기판 제어가 가능함을 확인하였다.

참고문헌

- Nakamura, S. Mukai, T. and Senoh, M., "Candela class high brightness InGa_N/AlGa_N double heterostructure blue light emitting diodes," Appl. Phys. Lett., Vol. 64, pp. 1687-1689, 1994.
- G. Chen, et al., "Performance of high-power III-nitride light emitting diodes," Phys. Status Solidi A, vol. 205, pp. 1086-1092, 2008.
- J. Huang, C. Liu, T. Chen, H. Huang, Fang. Lai, P. Lee, "Enhanced Light Extraction Efficiency of GaN-Based Hybrid Nanorods Light-Emitting Diodes," Ieee. J. of sele. topi. in quan. elec., vol. 21, pp. 107-114, 2015.
- J. Pan, C. Wang, "Light extraction efficiency of GaN-based LED with pyramid texture by using ray path analysis," vol. 20, opt. exp. vol. 21, pp. 789-800, 2012.
- H. Ryu, "Evaluation of Light Extraction Efficiency of GaN-Based Nanorod Light-Emitting Diodes by Averaging over Source Positions and Polarizations," vol. 8, Crystals, vol. 21, pp. 1-8, 2018.
- E. F. Schubert and J. K. Kim, "Solid-state light sources getting smart," Science, vol. 308, pp. 1274-1278, 2005.
- J. Y. Tsao, "Solid-state lighting: Lamps, chips, and materials for tomorrow," IEEE Circuits Devices Mag., vol. 20, pp. 28-37, 2004.
- L. Liu and J. H. Edgar, "Substrates for gallium nitride epitaxy," Mater. Sci. Eng. R, vol. 37, pp. 61-127, 2002.
- J. A. Rogers and Y. Huang, "A curvy, stretchy future for electronics," Proc. Nat. Acad. Sci. United States Amer., vol. 106, pp. 10875-10876, 2009.
- S.-I. Park, et al., "Printed assemblies of inorganic light-emitting diodes for deformable and semitransparent displays," Science, vol. 325, pp.977-981, 2009.
- M. Koo, S. Y. Park, and K. Lee, "Biointegrated flexible inorganic light emitting diodes," Nanobiosensors Disease Diag., vol. 1, pp. 5-15, 2012.
- R.-H. Kim, et al., "Waterproof AllInGaP optoelectronics on stretchable substrates with applications in biomedicine and robotics," Nature Mater., vol. 9, pp. 929-937, 2010.
- H.-S. Kim, et al., "Unusual strategies for using indium gallium nitride grown on silicon (111) for solid-state lighting," Proc. Nat. Acad. Sci. United States Amer., vol. 108, pp. 10072-10077, 2011.
- Zhang Y, Tan Y-W, Stormer, H L, and Kim P, "Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene Nature vol. 438, pp. 201-4, 2005.
- Geim, A K, and Novoselov K S, "The rise of graphene", Nat. Mater. Vol. 6, pp. 183-91, 2007.
- Balandin, A. A., Ghosh. S., Bao. W, Calizo. I., Teweldebrhan, D., Miao. F. and Lau. C. N., "Superior thermal conductivity of single-layer graphene.", Nano Lett. Vol. 8, pp. 902-7, 2008.
- Zhang, Y., Tang, T. T., Girit. C., Hao Z, Martin M C, Zettl A, Crommie M F, Shen Y R and Wang F., "Direct observation of a widely tunable bandgap in bilayer graphene." Nature, vol. 459, pp 820-3, 2009.
- Kim, K S, et al., "Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes," Nature., vol. 457, pp. 706-10, 2009.
- Lee, C., Wei, X., Kysar, J. W. and Hone, J., "Measurement of the elastic properties and intrinsic strength of monolayer graphene," Science, vol. 321, pp. 385-388, 2008.
- Cong, H. M. Cheng, W. J. Zh 21. Deswal, S., Malode, R. R., Kumar, A. & Kumar, A. "Controlled inter-state switching between quantized conductance states in resistive devices for multilevel memory," RSC Adv. v.9, pp.9494-9499, 2019.
- K. J. Kim, and J. J. Yang., "A Study on the III-nitride Light Emitting Diode with the Chip Integration by Metal Interconnection," J. of The Korean Society of Semiconductor & Display Technology, Vol. 3, pp. 31-35, 2004.
- B. M. So, H. K. Kim and W. Y. Han., "Developed High Output Point LED Light Source Module for Fiber Photo Sensor," J. of The Korean Society of Semiconductor & Display Technology, Vol. 17, pp. 36-40, 2018.
- Y. J. Choi, and Y. T. Lee., "Fabrication of Optical Sheet for LED Lighting with Integrated Environment Monitoring Sensors," J. of The Korean Society of Semiconductor & Display Technology, Vol. 12, pp. 31-39, 2013.

24. Lakowicz, J. R., "Principles of Fluorescence Spectroscopy," 2nd Ed., Kluwer Academic/Plenum, New York, 1999.
25. Shafran, E., Mangum, B. D. & Gerton, J. M., "Energy transfer from an individual quantum dot to a carbon nanotube," *Nano Lett.* Vol. 10, pp. 4049–4054, 2010.
26. Chen, Z., Berciaud, S., Nuckolls, C., Heinz, T. F. & Brus, L. E., "Energy transfer from individual semiconductor nanocrystals to graphene," *ACS Nano* vol. 4, pp. 2964–2968, 2010.
27. Agranovich, V. M., Gartstein, Yu. N. and Litinskaya, M., "Hybrid resonant organic-inorganic nanostructures for optoelectronic applications.," *Chem. Rev.* vol. 111, pp. 5179–5214, 2011.
28. Chou, K. F. & Dennis, A. M., "Föster resonance energy transfer between quantum dot donors and quantum dot acceptors," *Sensors*, vol. 15, pp. 13288–13325, 2015.
29. J. W. Pan and C. W. Fan, "High luminance hybrid light guide plate for backlight module application," *Opt. Express*, vol. 19, pp. 20079–20087 (2011).
30. Y. Ee, P. Kumnorkaew, R. Arif, H. Tong, J. Gilchrist, and N. Tansu, "Light extraction efficiency enhancement of InGaN quantum wells light-emitting diodes with polydimethylsiloxane concave microstructures," *Opt. Express*, vol. 17, pp.13747–13757, 2009.
31. H. Ichikawa and T. Baba, "Efficiency enhancement in a light-emitting diode with a two-dimensional surface grating photonic crystal," *Appl. Phys. Lett.* vol. 84, pp.457–459, 2004.
32. J. Pan, S. Tu, W. Sun, C. Wang, and J. Chang, "Integration of non-Lambertian LED and reflective optical element as efficient street lamp," *Opt. Express*, vol. 18, pp.A221–A230, 2010.

접수일: 2021년 9월 7일, 심사일: 2021년 9월 13일,
게재확정일: 2021년 9월 16일