

マイクロ-ホール パターンド p-GaN 上に内蔵された Au ナノクラスターによる緑色発光ダイオードの効率向上研究

박아현*, 백승재**, 서은경***, 서태훈****

*(주)엠이티솔루션

**한국해양과학기술원 해양ICT융합연구센터

***전북대학교 반도체화학공학부

****한국생산기술연구원 그린에너지나노연구그룹

e-mail: *ahpark14@gmail.com, ****thseo@kitech.re.kr

Enhanced Efficiency of Green GaN LEDs via Exciton-Surface Plasmon Coupling by Au Nanoclusters Embedded in a Micro-Hole Patterned p-GaN Layer

Ah Hyun Park*, Seungjae Baek**, Eun-Kyung Suh***, Tae Hoon Seo****

*R&D Center, Marine Equipment Technology Solutions

**Maritime ICT R&D Center, Korea Institute of Ocean Science and Technology

***School of Semiconductor and Chemical Engineering, Chonbuk National University

****Green Energy&Nano Technology R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology

요약

본 논문에서는 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 내장된 Au 나노클러스터에 의한 발광 효율이 향상된 녹색 발광다이오드(Light-Emitting Diodes: LEDs)에 대해 보고한다. 저온 광발광 (Photoluminescence: PL) 및 시간 분해 광발광 측정 결과, 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드는 일반적인 녹색 발광다이오드에 비해 높은 내부 양자 효율과 빠른 감쇠 시간으로 발광 효율이 향상되었다. 또한, 본 논문에서 제안한 구조를 적용한 녹색 발광다이오드의 광·전기적 특성이 우수함을 확인할 수 있었다. 따라서 관찰된 녹색 발광다이오드의 발광 효율 향상은 다중 양자 우물(Multi-Quantum Wells: MQWs)의 엑시톤(Exciton)과 Au 나노클러스터의 표면 플라즈몬 공명 효과 및 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층의 기하학적 모양으로 인한 표면 텍스처링 효과로 인해 나타난다.

1. 서론

질화물계 발광다이오드(Light-Emitting Diodes)는 청색, 녹색, 자외선 영역의 빛을 발광할 수 있는 소자로 현재 디스플레이, 광 기억 장치 및 고체 조명 등 다양한 산업 분야에서 광범위하게 사용되고 있다[1-2]. 내부 양자 효율(Internal Quantum Efficiency)과 광 추출 효율(Light Extraction Efficiency)로 이루어진 GaN 기반 청색 발광다이오드의 외부 양자 효율(External Quantum Efficiency)은 80% 이상 나타나지만, GaN 기반 녹색 발광다이오드의 외부 양자 효율은 30% 정도로 여전히 낮다. 녹색 스펙트럼 영역의 낮은 양자 효율에 대한 현상을 “그린-캡”이라고 부른다[3]. 다중 양자 우물(Multi-Quantum Wells)의 In 몰분율이 증가함에 따라 강한 자발 분극과 내부 압전 전기장이 증가한다[4]. 따라서 녹색 발광다이오드의 내부 양자 효율은 청색 발광다이오드의 내부 양자 효율보다 훨씬 낮다. 또한, 질화갈륨(GaN)과 공기 사이의 큰 굴절률 차이와 광자 재흡수로 인해 내부 전반사가 발생

하여 광 추출 효율이 저하된다. 이러한 양자 효율 저하를 해결하고자, 패턴된 사파이어 기판[5], 엑시톤-표면 플라즈몬 공명[6], 표면 텍스처링[7] 등 다양한 연구들이 진행되었다. 특히, 발광다이오드의 높은 양자 효율 달성을 위한 엑시톤-표면 플라즈몬 공명 기술은 상당한 주목을 받고 있다. 표면 플라즈몬은 강하고 국부적인 전자기장을 가진 공명 파장의 전기장에 의해 여기 된다. 다중 양자 우물과 같은 활성층이 전자기장의 침투 가능 깊이 내에 위치하면 엑시톤-표면 플라즈몬 공명이 발생하고, 엑시톤과 표면 플라즈몬 사이의 에너지 전달로 인해 발광 재결합률이 증가한다.

본 논문에서는 녹색 발광다이오드의 내부 양자 효율과 광 추출 효율을 개선하기 위해서 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터를 형성한다. p-GaN 층의 마이크로-홀 패턴은 엑시톤-표면 플라즈몬 공명 발생을 위한 Au 나노클러스터가 다중 양자 우물 근처에 위치할 수 있도록 할 뿐만 아니라, 더 나은 광 탈출 콘 각도를 형성하기 위한 산란 센터 역할도 한다.

2. 실험방법

InGaN/GaN 녹색 발광다이오드는 유기 금속 화학 증착법(Metal Organic Chemical Vapor Deposition)으로 사파이어 기판 위에 제작된다. 녹색 발광다이오드의 박막 구조는 2 μm un-doped GaN 층, 2 μm n-type GaN 층, 3 nm InGaN/12 nm GaN 다중 양자 우물 및 150 nm p-type GaN 층으로 구성된다. p-GaN 층의 열 활성화를 위하여 금속 열처리 장비(Rapid Thermal Annealing)를 이용하여 940도, 40초 동안 질소 분위기에서 열처리를 진행한다.

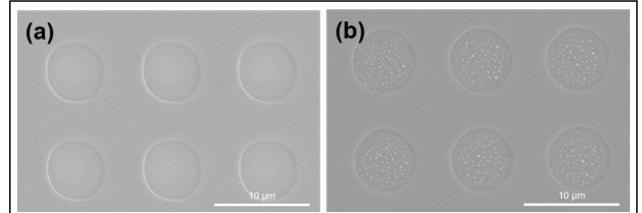
박막을 이용하여 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터를 형성하여 녹색 발광다이오드를 제작한다. 먼저 n-전극을 형성하기 위하여 n-GaN 층이 노출될 때까지 유도 결합 플라즈마(Inductively Coupled Plasma) 장비를 이용하여 박막을 에칭한다. 이후, 포토레지스트(Photoresist)를 이용하여 p-GaN 층에 마이크로-홀 패턴을 형성하고 대략 100 nm 두께를 에칭한 후, 전자빔 증착기(E-beam Evaporator)로 5 nm 두께의 Au 박막을 증착한다. p-GaN 층 표면에 남아있는 포토레지스트를 제거하고, 금속 열처리 장비를 이용하여 500도, 3분 동안 질소 분위기에서 열처리를 진행한다. 열처리 후, Au 박막은 Ostwald ripening 현상에 의해 나노클러스터로 변형된다. 발광다이오드의 전류 확산층으로 200 nm 인듐 주석 산화물(Indium Tin Oxide)을 증착하고, p-전극과 n-전극으로 각각 50 nm Cr/250 nm Au 금속 박막을 증착한다.

3. 결과 및 고찰

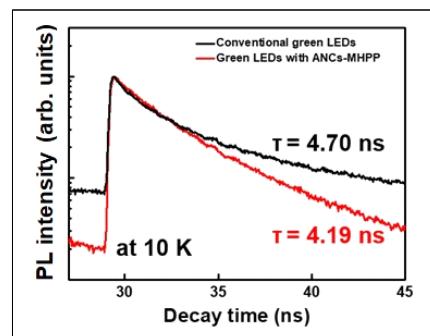
그림 1은 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층과 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 평면도 주사전자현미경 이미지를 보여준다. p-GaN 층의 마이크로-홀 패턴의 직경과 주기는 각각 대략 6 μm, 10 μm이다. Ostwald ripening 현상에 의해 형성된 Au 나노클러스터의 평균 직경은 100–200 nm이며, 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층 내부에만 형성된 것을 확인할 수 있다.

다중 양자 우물의 엑시톤과 Au 나노클러스터의 표면 플라즈몬 공명을 확인하기 위해 시간 분해 광발광(Time-resolved Photoluminescence) 측정을 수행했다. 그림 2는 10 K에서 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드와 일반적인 녹색 발광다이오드의 시간 분해 광발광의 감쇠 곡선을 보여준다. 자발 발광의 감쇠 시간 τ 는 감쇠 곡선을 $I(t)=Ae^{-t/\tau}$ 의 mono-exponential decay model을 이용하여 피팅 한 값으로 얻을 수 있다. 그 결과, 감쇠 시간 τ 는 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드의 경우 4.19 ns, 일반적인 녹색 발광

다이오드의 경우 4.70 ns로 나타난다. 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드는 일반적인 녹색 발광다이오드와 비교하여 빠른 감쇠 시간 τ 을 보이는데, 이것은 엑시톤-표면 플라즈몬 공명이 발광다이오드의 새로운 빠른 재결합 경로로 작용하기 때문이다.

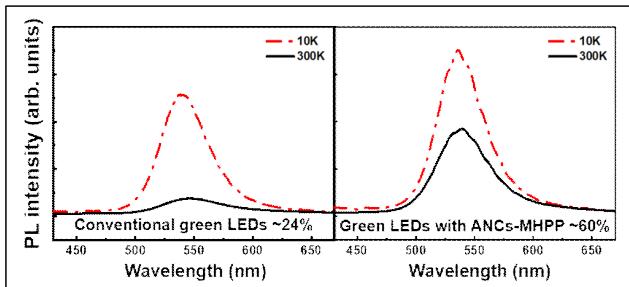


[그림 1] (a) 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층 및 (b) 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 내장된 Au 나노클러스터 평면도 주사전자현미경 이미지

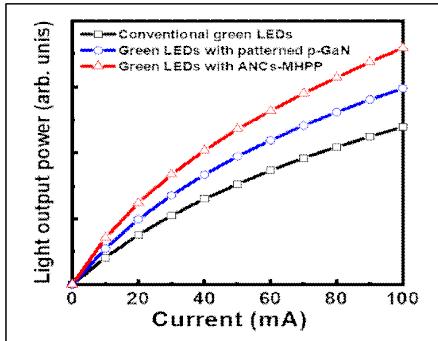


[그림 2] 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드와 일반적인 녹색 발광다이오드의 10 K에서 측정된 시간 분해 광발광 감쇠 시간

엑시톤-표면 플라즈몬 공명에 의한 내부 양자 효율을 확인하기 위하여 광발광 측정을 수행했다. 일반적인 녹색 발광다이오드와 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드의 최대 광발광 피크 파장은 각각 10 K에서 539 nm와 536 nm로 그림 3에서 확인할 수 있다. 따라서, 발광다이오드에 Au 나노클러스터를 사용하면 피크 파장이 3 cm^{-1} 만큼 청색 편이가 일어나는데, 이러한 현상은 엑시톤-표면 플라즈몬 공명의 결과이다. 또한, 내부 양자 효율은 10 K에서 발광 재결합이 우세하다는 가정하에 10 K에서의 광발광 강도와 300 K에서의 광발광 강도의 비율로 정의된다. 일반적인 녹색 발광다이오드와 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 있는 녹색 발광다이오드의 내부 양자 효율은 각각 24%와 60%로 계산된다. 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 있는 녹색 발광다이오드의 항상된 내부 양자 효율은 다중 양자 우물의 엑시톤과 Au 나노클러스터의 표면 플라즈몬 사이의 공명에 의한 자발적 재결합률이 개선되었기 때문이다.



[그림 3] 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드와 일반적인 녹색 발광다이오드의 10 K과 300 K에서 측정된 광발광 스펙트라



[그림 4] 일반적인 녹색 발광다이오드, 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층이 형성된 녹색 발광다이오드 및 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드 각각의 구동 전류에 따른 광 출력

그림 4는 본 논문에서 제작한 세 가지 유형의 발광다이오드에 대한 주입 전류에 따른 광 출력이다. 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층이 형성된 녹색 발광다이오드는 표면 텍스처링 효과로 인해 일반적인 녹색 발광다이오드에 비해 20 mA의 주입 전류에서 광 출력이 약 32% 높다. 또한, 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터가 형성된 녹색 발광다이오드의 광 출력은 일반적인 녹색 발광다이오드에 비해 20 mA의 주입 전류에서 약 64% 증가한다. Au 나노클러스터와 관련된 광 출력 향상은 감소된 면 및 접촉 저항, 증가된 캐리어 농도, 표면 텍스처링 효과, 그리고 Au 나노클러스터에 기인한 전기장의 향상으로 강화된 전류 및 확산 주입 효율이 강화되었기 때문이다.

우리는 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층에 Au 나노클러스터를 형성함으로써 발광 효율이 향상된 녹색 발광다이오드를 제작했다. 이는 녹색 발광다이오드의 다중 양자 우물의 엑시톤과 Au 나노클러스터의 표면 플라즈만 사이의 엑시톤-표면 플라즈몬 공명과 마이크로-홀 패턴된 p-GaN 층으로 인한 표면 텍스처링 효과로 인해 발광 효율이 향상됨을 증명하였다.

참고문헌

- [1] Z. Y. Fan, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, “III-nitride micro-emitter arrays: development and applications”, J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 41, pp. 094001, 2008년.
- [2] J. J. Wierer and N. Tansu, “III-nitride micro-LEDs for efficient emissive displays”, Laser&Photonics Rev., vol.

13, pp. 1900141, 2019년.

- [3] E. Taylor, P. R. Edwards and R. W. Martin, “Colorimetry and efficiency of white LEDs: Spectral width dependence”, Phys. Status Solidi A, vol. 209, pp. 461, 2012년.
- [4] A. Hangleiter, F. Hitzel, S. Lahmann, and U. Rossow, “Composition dependence of polarization fields in GaInN/GaN quantum wells”, Appl. Phys. Lett., vol. 83, pp. 1169, 2003년.
- [5] S.-H. Chao, L.-H. Yeh, R. T. Wu, K. Kawagishi, and S.-C. Hsu, “Novel patterned sapphire substrates for enhancing the efficiency of GaN-based light-emitting diodes”, RSC Advances, vol. 10, pp. 16284, 2020년.
- [6] A. Fadil, D. Lida, Y. Chen, J. Ma, Y. Ou, and P. M. Petersen, “Surface plasmon coupling dynamics in InGaN/GaN quantum-well structures and radiative efficiency improvement”, Sci. Rep., vol. 4, pp. 6392, 2014년.
- [7] R. Dylewicz, A. Z. Khokhar, R. Wasielewski, P. Mazur, and F. Rahman, “Nanotexturing of GaN light-emitting diode material through mask-less dry etching”, Nanotechnology, vol. 22, pp. 055301, 2011년.