

In_xGa_{1-x}N/GaN 양자우물 구조의 수치 해석을 이용한 압전장 평가

Estimation of Piezoelectric Fields built in In_xGa_{1-x}N/GaN Quantum Well Structures using Numerical Analysis

김경찬¹, 김태근^{1,a}

(Kim Kyoung-Chan¹ and Kim Tae-Geun^{1,a})

Abstract

Piezoelectric fields built in In_xGa_{1-x}N/GaN (x=0.06~0.1) quantum wells (QWs) have been estimated by comparing the transition energies, both calculated and measured by photoluminescence (PL). The calculation was numerically carried out with a rectangular QW model, where the effective bandgap considering a bowing factor, energy levels quantized for the lowest lying electrons and heavy holes (1e-1hh), and biaxial compressive strain were included except for the piezoelectric fields. The calculated values were observed to be larger (9~15 meV) than the measured values by PL, which was considered to be caused by the piezoelectric fields built in InGaN/GaN QW interface. In addition, we observed the energy shift by measuring the EPDPL (excitation power-dependent PL), which was compared with the energy difference caused by the piezoelectric fields.

Key Words : InGaN/GaN, QW (quantum well), PL (photoluminescence), Piezoelectric fields

1. 서론

최근 질화갈륨(GaN)[1-3] 물질을 이용한 청색, 녹색 발광 다이오드(light emitting diodes, LEDs)에 대한 상업화의 성공으로 인듐갈륨질소/갈륨질소(InGaN/GaN) 양자우물(quantum well) 구조에 대한 관심이 고조되고 있으며, 이들 구조에 대한 보다 정확한 이해가 요구되고 있다[4]. 그러나, InGaN/GaN 양자우물 구조는 에너지 밴드 오프셋(energy band offset), 인듐 불균일성(indium non-uniformity), 격자 부정합(lattice-mismatch)으로 인한 변형(strain)과 압전장(piezoelectric fields)등과 같은 많은 불확실한 재료 성분(material parameters)을 갖기 때문에 재료 특성을 이용한 실험적인 부분은 어느 정도

진행되고 있으나, 상대적으로 이들 구조의 양자 에너지 준위 및 전이 에너지에 대한 시뮬레이션은 활발하게 수행되지 못하고 있다. 특히, 압전장은 인듐 조성에 따른 변형 정도가 매우 크고, 방출 에너지의 Stark shift를 야기시켜 전위 모양(potential profile)을 깨뜨리고, 광학적 특성을 변형시키기 때문에 InGaN/GaN 양자우물 구조의 정확한 계산을 위하여 가장 먼저 고려되어야 할 인자이다[5]. 일반적으로 내부전장은 자발 분극(spontaneous polarization)과 압전 분극(piezoelectric polarization)에 의하여 발생하는 것으로 알려져 있으며, 특히 InGaN/GaN 재료에서는 압전 분극에 의하여 주도적으로 발생하는 것으로 보고된 바 있다[6]. 또한, Chichibu 연구팀에서는 In_{0.25}Ga_{0.75}N/GaN 양자우물에 대한 압전장이 1.4 MV/cm 정도[7], C. Y. Lai 연구팀에서는 In_{0.23}Ga_{0.77}N/GaN 양자우물에 대한 압전장이 1.7~1.9 MV/cm 정도라고 보고하였다[8].

본 논문에서는 파장 360~400 nm 영역의 UV-LED(ultraviolet-light emitting diode) 개발을 위해

1 : 광운대학교 전자재료공학과
(서울시 노원구 월계동 447-1,
Fax : 02-943-5117,

a : Corresponding Author : tgkim@daisy.kw.ac.kr
2003년 5월 22일 접수, 2003년 6월 10일 1차 심사완료,
2003년 6월 27일 최종 심사완료

여, 인듐 조성에 따른 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ($x=0.06\sim 0.1$) 양자우물 구조의 에너지를 수치 해석 방법으로 계산하였다.

먼저, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 벌크 샘플(bulk sample)로부터 측정된 PL 에너지와 계산된 에너지를 비교하여 bowing factor를 결정하였고, 이를 고려하여 유효 에너지 밴드갭을 계산하였다. InGaN/GaN 양자우물 구조의 에너지 밴드 오프셋(offset)을 0.67/0.33으로 정하여[9] time-independent 슈뢰딩거(Schrödinger) 파동 방정식을 수학적으로 풀어 전도대와 가전자대의 양자화된 기저 에너지 준위를 계산하였다. 다음으로, 양축 압축 변형(biaxial compressive strain)에 의한 양자우물 구조의 가전자대 에너지 변위를 계산하였고, 마지막으로 압전장을 제외하고 계산된 천이 에너지와 PL로 측정된 천이 에너지를 비교하여, 계산된 천이 에너지가 9~15 meV 크게 나타난 것을 관찰하였다. 또한, EPDPL (excitation power dependent PL)을 측정하여 앞서 구해진 압전장에 의한 에너지 변위를 평가하였다.

2. $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물 구조의 수학적 계산

InGaN/GaN 양자우물 구조의 첫 번째 전자와 첫 번째 heavy hole(1e-1hh)의 양자화된 준위간의 천이 에너지를 계산하기 위하여, 그림 2와 같은 사각 양자우물 구조를 모델화하였고, 전체 천이 에너지에 영향을 주는 인자들을 식 (1)과 같이 고려하였다.

$$E_{1e-1hh} = E_g + \Delta E_{cle} + \Delta E_{vlhh} + \Delta E_{hh} + \Delta E_{pz} \quad (1)$$

여기서 E_{1e-1hh} 는 1e-1hh간의 전체 천이 에너지이고, E_g 는 전도대와 가전자대간의 유효 에너지 밴드갭이며, ΔE_{cle} 와 ΔE_{vlhh} 는 각각 1e-1hh의 양자화된 에너지 준위이다. 또한, ΔE_{hh} 와 ΔE_{pz} 는 양축 압축 변형과 압전장에 의해 발생한 에너지의 변화이다. 각각의 인자들을 다음과 같이 계산하였다.

2.1 유효 에너지 밴드갭, E_g

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물의 E_g 를 계산하기 위해서는 먼저 bowing factor를 결정해야 한다. 이를 위하여 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ($x=0.12\sim 0.35$) 벌크 샘플의 PL 에너지를 조사하였고, 그 결과를 아래의 식 (2)에 의해 계산한 결과와 비교하였다.

$$E_{g\text{InGaN}}(x) = (1-x) \cdot E_{g\text{GaN}} + x \cdot E_{g\text{InN}} - B \cdot x \cdot (1-x) \quad (2)$$

여기서 B 는 bowing factor이고, 일반적으로 1~3의 범위의 값을 갖는 것으로 보고되고 있다[10]. 또한, x 는 인듐 조성(indium composition)이다.

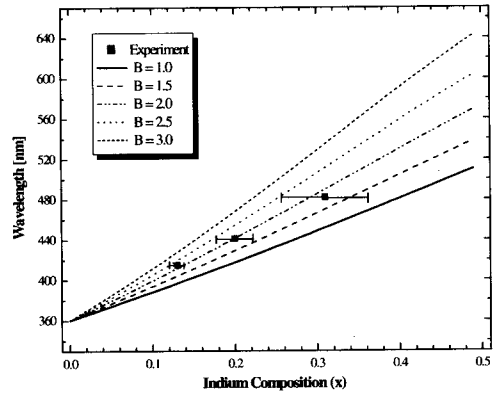


그림 1. $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ($x=0.12\sim 0.35$) 벌크 샘플에서 PL에 의해 측정된 파장과 식 (2)에 의해 계산된 파장의 비교.

Fig. 1. Comparison of wavelength calculated by equation (2) and measured by PL in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ($x=0.12\sim 0.35$) bulk samples.

그림 1은 식 (2)를 이용하여 B 값(1~3)에 따른 인듐 조성의 함수로써 계산된 파장(various lines)과 PL로 측정된 파장(closed squares)의 비교를 보여준다. 인듐 조성이 증가함에 따라 계산된 파장은 거의 선형적으로 증가함을 알 수 있으며, 증가율은 B 값에 비례하기 때문에 인듐 조성이 높을수록 B 값에 대한 파장의 의존성이 커짐을 알 수 있다. 또한, PL로 측정된 파장은 인듐 조성이 증가함에 따라 계산값과의 오차 정도가 증가함을 알 수 있는데, 이것은 인듐 조성이 증가함에 따라 인듐의 불균일성이 커져 PL 파장 또는 X-ray에 의하여 얻어진 인듐 조성이 실제값과 달라질 수 있기 때문으로 생각된다. 본 논문에서는 인듐의 조성이 6~10%인 샘플을 사용하였기 때문에 그림 1로부터 B 값을 2.5로 결정하였다. 이때 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}$ 인 경우를 예로 들면 유효 에너지 밴드갭은 식 (2)로부터 3.132 eV로 계산되고, 그 값을 그림 2에 명시하였다.

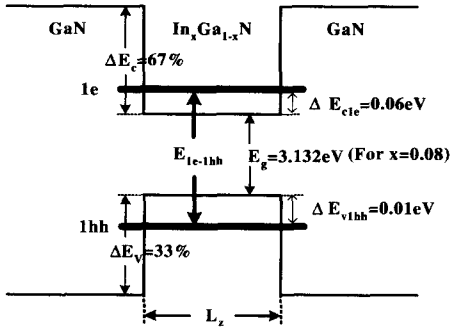


그림 2. 모델화된 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 사각 양자우물 에너지 밴드 구조.

Fig. 2. A simplified rectangular energy-bands structure of the InGaN/GaN QWs.

2.2 기저준위 전자와 heavy hole의 양자화된 에너지 준위, ΔE_{ctc} , ΔE_{ctb}

양자 크기 효과(quantum size effects)에 의하여 이동한 전자와 heavy hole의 에너지 고유상태(eigenstates)를 이해하기 위하여 유효 질량 근사(effective mass approximation)로 time-independent 슈뢰딩거(Schrödinger) 파동 방정식을 적용하였다. 이러한 계산을 위하여 InGaN/GaN 양자우물 구조를 그림 2와 같이 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 사각 양자우물 에너지 밴드 구조로 모델화하였다. 여기서 전도대와 가전자대의 에너지 밴드 오프셋 비율(E_c/E_v)은 0.67/0.33으로 결정하였으며, 1e-1hh의 양자화된 에너지는 다음의 식 (3)에 의해 계산되었다.

$$\tan \xi_z \sqrt{\frac{8\pi^2 m_0}{2^2 h^2} \sqrt{m_{c,v} m_{\text{GaN}}(x) E_i}} = \sqrt{\frac{m_{c,v} V_{oc,v}(x) - E_i}{m_b E_i}} \quad (3)$$

여기서 L_z 는 우물 두께(well thickness)이고, m_0 는 자유 전자 질량이며, $V_{oc,v}$ 는 각각 전도대와 가전자대의 전위 장벽이다. m_b 는 장벽에서의 캐리어(carrier) 유효 질량이고, $m_{c,v}$ 는 우물에서 전도대와 가전자대의 캐리어 유효 질량이다. 또한, h 는 프랑크(Planck) 상수이고, E_i 는 양자화된 에너지 준위이다. 식 (3)에서 iteration 방법으로 E_i 를 찾음으로써 양자화된 에너지 준위를 계산할 수 있었다. 예를 들면, $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물의 기저준위 전자와 heavy hole의 양자화된 에너지 준위는 각각 식 (3)으로부터 0.06 eV, 0.01 eV로 계산되었고, 그 값을 그림 2에 명시하였다.

2.3 양축 압축 변형에 의한 에너지 이동, ΔE_{th}

앞에서 언급한 바와 같이, InGaN/GaN 양자우물 구조의 격자 부정합이 매우 크기 때문에 변형 효과(strain effect)를 정확하게 고려해야 한다. InGaN/GaN 양자우물은 양축 압축 변형에 의하여 가전자대의 light hole과 heavy hole의 유효 질량이 변화되기 때문에 전도대 바닥에 대한 가전자대 꼭대기의 에너지 변화가 발생한다. 이 에너지의 변화는 아래의 식 (4)에 의하여 계산될 수 있다.

$$\Delta E_{th}(x) = -\Xi(x) \cdot \epsilon(x) \cdot \left\{ \frac{C_{11}(x) - C_{12}(x)}{C_{11}(x)} \right\} + b(x) \cdot \epsilon(x) \cdot \left\{ \frac{C_{11}(x) + C_{12}(x)}{C_{11}(x)} \right\} \quad (4)$$

여기서 $\Xi(x)$ 는 정수 변형 전위(hydrostatic deformation potential)이고, $\epsilon(x)$ 는 변형(strain)이며, $b(x)$ 는 전단 변형 전위 (shear deformation potential)이다. 또한, $C_{ij}(x)$ 는 탄성 계수이다[11]. $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물을 예로 들면 양축 압축 변형에 의한 에너지 변위는 식 (4)로부터 0.027 eV로 계산되었고, 그 값을 그림 2에 명시하였다.

끝으로, InGaN/GaN 양자우물의 1e-1hh간의 전체 전이 에너지를 정확하게 계산하기 위해서는 압전장 효과가 반드시 고려되어야만 한다. 이를 위하여, 많은 연구팀들이 InGaN/GaN 양자우물 구조에 걸리는 압전장 효과에 대하여 활발한 연구를 진행하고 있으나 서론에서 언급한 바와 같이 불확실한 재료 성분 때문에 InGaN/GaN 양자우물 내부 압전장에 대한 정확한 계산은 이루어지지 않고 있다. 본 논문에서는 PL로 측정된 전이 에너지와 압전장을 제외하고 계산한 전이 에너지를 비교하여 InGaN/GaN 계면에 걸리는 압전장 효과를 간접적으로 관찰하고자 하였다. 그림 3은 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ($x=0.06 \sim 0.1$) QW에 대한 우물 두께에 따른 계산한 파장(various lines)과 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물에 대하여 PL로 측정된 파장(closed squares)의 비교를 보여준다. 계산된 파장은 우물 두께가 증가함에 따라 루트(root) 함수 형태로 증가함을 알 수 있고, x 값이 0.08인 경우 38 Å에서 파장이 385 nm로 계산되었다. 또한, PL로 측정된 파장은 38 Å의 우물 두께 부근에서 390~393 nm로 분포하는 것을 알 수 있는데, 이러한 산포는 우물 두께와 인듐 조성의 실험적인 오차에 의하여 발생된 것으로 생각된다. 여기서 우물의 두께는 TEM (transmission electron microscopy)에 의해 측정되었다. 계산된 파장이 5~

8 nm (9 ~ 15 meV) 작게 나타나는데, 이것은 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물 계면의 압전장에 의해 발생한 red shift라고 생각된다.

또한, EPDPL 측정을 통하여 앞서 구해진 압전장을 실험적으로 증명하였다. 그림 4에서 보여주는 바와 같이 레이저 광원 출력(source power)을 $0.02 \sim 127 \text{ kW}/\text{cm}^2$ 까지 증가시킬 때 PL 피크의 중심 파

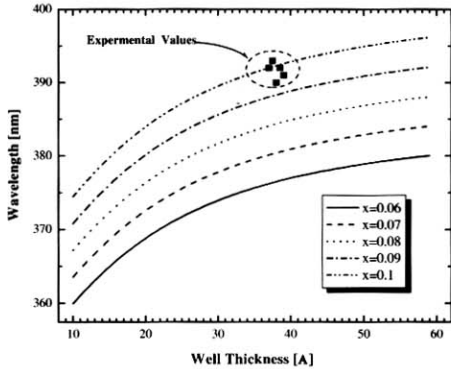


그림 3. 인듐 조성을 변화시키면서 우물 두께에 따라 계산된 파장과 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ 양자우물에서 PL로 측정된 파장의 비교.

Fig. 3. Comparison of wavelength measured by PL in $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}/\text{GaN}$ QW and calculated as a function of well thickness with varying indium composition ($x=0.06 \sim 0.1$).

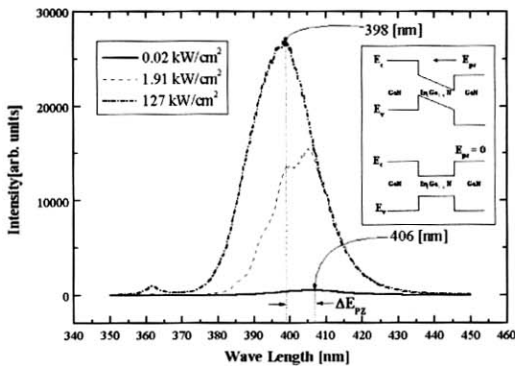


그림 4. 인가된 파워에 따른 PL 피크 중심파장의 blue shift 정도.

Fig. 4. The blue shift of wavelength with applied power.

장이 약 8 nm 정도 blue shift된 것을 관찰하였다. 이는 삽입된 그림에서 나타나는 바와 같이 레이저 광원 출력의 증가에 따라 InGaN/GaN 계면에 걸린 압전장이 상쇄되기 때문으로 생각된다. Band filling 효과를 2~3 nm 정도로 고려하였을 때, 실질적으로 압전장에 의해 발생한 파장은 5 nm 정도 나타난 것으로 생각할 수 있다. 이것은 앞서 평가된 압전장에 의해 발생된 파장의 변위와 거의 일치하는 값이다. InGaN/GaN 양자우물에 걸리는 내부 압전장에 대한 연구는 이들 구조를 이용하는 광 소자(optical devices)의 방출 파장 설계시 매우 유용한 정보를 줄 것으로 기대된다.

3. 결론

본 논문에서는 유효 에너지 밴드갭, 양자 크기 효과와 변형효과를 고려한 계산값과 PL로 측정된 실험값을 비교하여 InGaN/GaN 양자우물 계면에 걸리는 내부 압전장의 크기를 평가하였다. 계산된 전체 전이 에너지는 PL 파장에 비해 약 9~15 meV 크게 관찰되었는데, 그 차이를 InGaN/GaN 양자우물 구조의 계면에서 발생하는 압전장에 의한 에너지 변위로 생각하였고, 이렇게 평가된 압전장은 EPDPL에 의한 에너지 변위 정도와 거의 일치함을 알 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 MOST-Nano R&D program의 지원에 의해 연구되었습니다.

참고 문헌

- [1] 송복식, 김영호, 이재구, 정성훈, 문동찬, 김선태, "HVPE 법에 의한 기관재료용 후막 GaN 에피택셜 성장에 관한 연구", 전기전자재료학회지논문지, 10권, 4호, p. 362, 1997.
- [2] 김선태, 문동찬, "HVPE 법으로 성장된 GaN 기관의 광학적 특성", 전기전자재료학회지논문지, 11권, 10호, p. 784, 1998.
- [3] 윤진섭, "GaN 소자의 쇼트키 특성 향상에 관한 연구", 전기전자재료학회지논문지, 14권, 9호, p. 700, 2001.
- [4] I. Akasaki and H. Amano, "For a rescent

- review see", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 36, p. 5393, 1997.
- [5] T. Takeuchi, S. Yamaguchi, H. Amano, and I. Akasaki, "Determination of piezoelectric fields in strained GaInN quantum wells using the quantum-confined stark effect", J. Appl. Phys. Lett., Vol. 73, p. 1691, 1998.
- [6] F. Bernardini and V. Fiorentini, "Macroscopic polarization and band offsets at nitride heterojunctions", Phys. Rev. B 57, R9427, 1998.
- [7] S. F. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, T. Mukai, and S. Nakamura, "Localized quantum well excitons in InGaN single-quantum-well amber light-emitting diodes", J. Appl. Phys., Vol. 88, p. 5153, 2000.
- [8] C. Y. Lai, T. M. Hsu, W.-H. Cahng, and K.-U. Tseng, "Direct measurement of piezoelectric field in In_{0.23}Ga_{0.77}N/GaN multiple quantum wells by electro-transmission spectroscopy" J. Appl. Phys., Vol. 91, p. 531, 2002.
- [9] P. T. Landsberg, M. Osinski, and M. Yamanishi, "Progress and prospects of group-III nitride semiconductors", Progress in quantum electronics, Vol. 20, No. 5/6, p. 445, 1996.
- [10] T. Takeuchi, H. Takeuchi, S. Sota, H. Sakai, H. Amano, and I. Akasaki, "Optical properties of strained AlGaIn and GaInN", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 36, p. L177, 1997.
- [11] M. Suzuki and A. Yanase, "First-principles calculations of effective-mass parameters of AlN and GaN.", Phys. Rev. B, Vol. 52, p. 8232, 1995.