

논문 21-6-3

초격자 Buffer를 사용한 InGaN/GaN 양자우물에서 Piezoelectric 효과의 측정과 Strain 감소에 대한 연구

Measurement of Piezoelectric Effect and Reduction of Strain in InGaN/GaN Quantum Well with Superlattice Buffer

공경식¹, 안주인¹, 이석주^{1,a}
(Kyoungshick Kong¹, Joo-In An¹, and Seuk Joo Rhee^{1,a})

Abstract

In order to reduce the piezoelectric field originated from the well layer which resides in InGaN/GaN light emitting diode, InGaN/GaN superlattice buffer layers were grown at the bottom and the top of the active layer. Measuring the photoluminescence spectra with different reverse bias voltages clearly revealed the condition of the flat band under which the transition energy is maximized and the linewidth is minimized. Accordingly, the piezoelectric field of In_{0.15}Ga_{0.85}N in our sample was estimated as -1.08 MV/cm. It is less than half the value reported in the previous studies, and it is evidenced that the strain has reduced due to the superlattice buffer layers.

Key Words : InGaN, Piezoelectric field, Quantum well, Flat band, Reduction of strain

1. 서 론

InGaN/GaN 양자우물 구조는 가시광선에서 자외선 영역에까지의 넓은 영역의 빛을 만들 수 있고 효율이 높아 레이저 다이오드, 발광 다이오드 등의 소자에 널리 사용되고[1], 이를 기반으로 여러 조명등 - 신호등이나 백색 광원 - 에서 구시대의 광원을 대체해 나가고 있다. 이미 실생활에 사용되고 있는 물질임에도 불구하고, InGaN/GaN 재료는 아직도 많은 과제들을 안고 있다. GaN 위에 성장된 InGaN 층은 dislocation 밀도가 매우 높으므로 이를 줄여 결정성을 높이는 성장 방법들도 연구되고 있고[2,3], 결정성이 나쁜 물질임에도 불구하고 높은 광효율을 보이는 것은 localization 효과로 알려져 있지만 이 효과가 In-rich cluster에 의한 것인지 우물 크기의 차이에 의한 것인지도

아직 논의가 되고 있다[4-7].

특히 InN는 GaN보다 in-plane 결정 크기가 약 11 % 크기 때문에 GaN 위에 InGaN를 성장하면 필연적으로 불일치 변형을 유발한다[8]. Wurtzite 구조의 c-axis 방향의 변형은 piezoelectric field를 만들게 되고, pn 다이오드 광소자 형태의 활성층으로 만들어진 InGaN/GaN 양자우물은 공핍층 내부 전기장의 반대 방향으로 piezoelectric field가 작용하여 그림 1의 (a)와 같은 에너지 밴드 구조를 가지게 된다. 이 구조는 역방향 bias 상태에서 양자우물이 그림 1(b)와 같은 flat band가 되고, 빛을 방출하는 순방향 bias 상태에서 그림 1(c)처럼 전자와 정공들의 에너지 차이가 줄어들며 둘의 파동함수가 공간적으로 겹치지 않게 되는 소위 quantum confined Stark effect (QCSE)가 나타나게 된다[9-15]. 이 효과에 의해 oscillator strength가 줄어들게 되고, 결국 효율 저하로 이어지게 된다. 이 문제의 해결 방법들로 micro disc를 만들어 변형을 줄이는 방법[16], piezoelectric field가 발생하지 않는 nonpolar 방향으로 성장하는 방법[17,18] 등이 연구되고 있다.

1. 한국외국어대학교 전자물리학과
(경기도 용인시 처인구 모현면 왕산리 산89)
a. Corresponding Author : sjrhee@hufs.ac.kr
접수일자 : 2008. 4. 15
1차 심사 : 2008. 5. 16
심사완료 : 2008. 5. 22

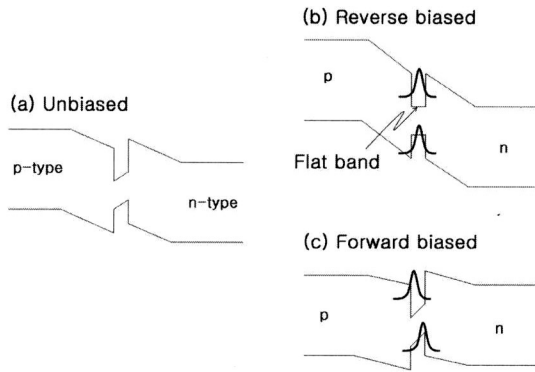


그림 1. pn 다이오드 구조의 바이어스 전압에 따른 에너지 밴드 그림. (a) 전압이 걸리지 않았을 때, (b) 알맞은 역방향 전압이 걸려 flat band가 되었을 때, (c) 순방향 전압이 걸렸을 때. 양자 우물 내의 곡선은 전자와 정공의 파동 함수를 나타낸다.

Fig. 1. The energy band diagrams for (a) unbiased, (b) reverse biased (to create a flat band), and (c) forward biased pn junction diode. The curves in the quantum well indicate the wave functions of the electrons and the holes in the well.

본 연구에서는 변형을 줄이기 위한 방법으로 InGa_{0.15}Ga_{0.85}N 초격자 buffer 층을 양자우물 활성층 위와 아래에 성장하였고, 역방향 bias를 걸어주며 photoluminescence (PL) 분광을 수행하여 flat band 조건을 정확하게 찾아내었고, 이를 이용하여 piezoelectric field의 크기를 알아내었다. 그 크기가 줄어든 것과 flat band 조건이 약한 역방향에서 관측되는 것 모두 광소자의 효율 증가 가능성을 보여주고 있다.

2. 실험

InGa_{0.15}Ga_{0.85}N 양자우물을 이용한 light emitting diode (LED) 시료가 metal-organic chemical vapor deposition 방법으로 (1000) Al₂O₃ (사파이어) 기판 위에 성장되었다.(Emcore Corp.) 기판위에 n-GaN 층을 3 μm 쌓고, 활성층의 변형을 줄이기 위하여 n-type In_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN 3 nm / 3 nm 초격자를 buffer 층으로 성장하였다. 그 위의 활성

층은 3 nm In_{0.15}Ga_{0.85}N 우물층과 10 nm GaN 장벽층으로 이루어진 5개의 다중양자우물로 이루어져 있다. 다시 p-type InGa_{0.15}Ga_{0.85}N 초격자층을 성장하고, 0.1 μm p-GaN 층을 덮어서 시료를 제작하였다. 시료의 광특성은 상온에서 +2.5 V에서 +3.9 V 까지 순방향 전압을 걸어주며 electroluminescence (EL) 을 측정하였고, +1.5 V의 순방향 전압에서부터 -14 V 역방향 전압까지를 걸어주며 photoluminescence (PL) 분광법을 이용하여 분석하였다. PL의 광원으로는 2 mW 325 nm 라인의 HeCd 레이저를 이용하였고, 시료에서 방출된 빛은 1 m single spectrometer로 분광되어 GaAs 광증배관을 이용하여 검출하였다.

3. 결과 및 고찰

역방향 전압을 걸어주며 측정한 몇 개의 PL 스펙트럼이 그림 2에 보여진다. 역방향 전압의 절대값이 커지면서 PL의 크기는 줄어든다. 이는 그림 1(b)에서 보이듯이 역방향 전압의 크기가 커지며 pn 접합의 공핍층의 기울기가 증가하게 되고, 양자우물에 만들어지는 전자, 정공들이 서로 결합하여 빛을 방출하지 못하고 각각 n-type, p-type 층으로 터널링을 통하여 쉽게 이동해 버리게 되면서 나타나는 현상이다. PL peak의 위치는 역방향 전압의 크기가 커지며 blue-shift 후에 red-shift하는 것을 볼 수 있다. 이러한 변화를 정확히 보기 위하여 각 PL 스펙트럼들을 fitting하였고, 아래 식 (1)의 extreme 함수를 통하여 스펙트럼들을 가장 잘 모사할 수 있었다.

$$f(x) = A \times \exp\left(-\exp\left(-\frac{x-x_c}{w}\right) - \frac{x-x_c}{w} + 1\right) \quad (1)$$

위 식 (1)에서 x_c 는 peak 위치, w 는 스펙트럼의 폭을 나타낸다. 각 peak의 fitting 결과를 정리한 것이 그림 3이다.

그림 3에는 bias 전압에 따른 PL peak 에너지, 폭, 크기가 각각 네모, 원, 삼각형의 모양으로 표현되어 있다. InGa_{0.15}Ga_{0.85}N 양자우물 pn 다이오드의 경우 역방향 전압의 크기가 커지며 flat band 조건이 되었을 때 PL의 전이 에너지는 최대가 되고, 전압의 크기가 더 커지게 되면 다시 전이 에너지가 작아지게 된다(그림 1의 (b) 참조). 그림 3의 -2.5 V에서 -14 V까지의 전압에서 네모 모양 데이터인

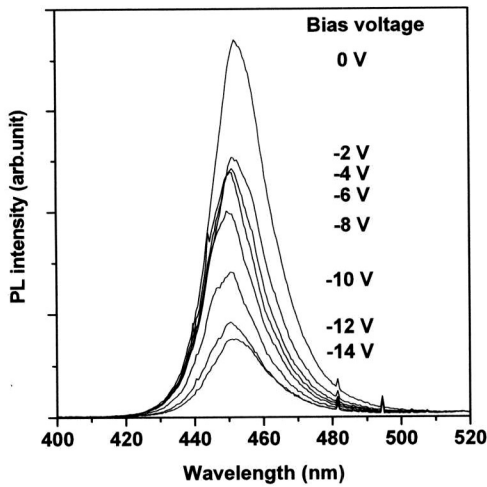


그림 2. 바이어스 전압의 변화에 따른 PL 스펙트럼. 역방향 전압이 커지며 크기는 작아지고, peak 위치는 blue-shift 후 red-shift 함을 보여준다.

Fig. 2. PL spectra with different reverse bias voltages. The intensity decreases, and the peak energy blue-shifts first and then red-shifts as the reverse voltage increases.

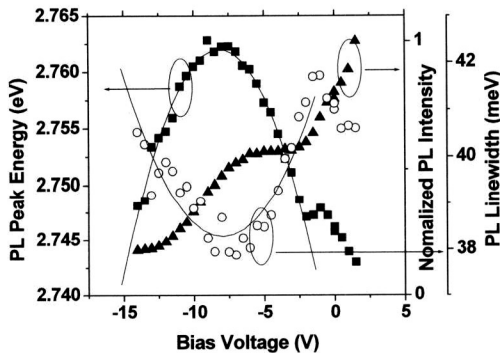


그림 3. 바이어스 전압에 따른 PL peak 에너지 (네모), PL 크기 (세모), PL peak의 폭 (원)의 변화. 실선들은 이차함수로 근사된 결과이다.

Fig. 3. The changes of PL peak energy (square), normalized PL intensity (triangle), and PL linewidth (circle) depending on different bias voltages. The curves fitted with a second order polynomial to the data are also shown.

PL 에너지 변화는 이러한 현상을 뚜렷이 보여주고 있다. 역방향 전압에 대하여 이차함수로 fitting한 결과가 실선으로 덧붙여져 있고, PL 전이 에너지가 최대치가 되는 역방향 전압 (flat band 조건에서의 역방향 전압 (V_{FB}))을 구하면 $V_{FB} = -8.15$ V이다. 현재까지 연구된 대부분의 InGaN/GaN 양자우물을 이용한 다이오드 구조에서는 flat band 조건이 breakdown 전압 근처이거나[11], 이보다 더 큰 역방향 전압에서 일어나므로[9,12] 이를 정확히 관측하지는 못하였다. 하지만 본 실험에서는 PL 전이 에너지에서 flat band 상태를 보여줄 뿐만 아니라 PL 폭, 크기의 변화도 flat band 상태에 이르렀음을 확실히 뒷받침하고 있다.

Flat band 상태가 되면 그림 1(b)에서 보듯이 전자, 정공의 상태함수가 모두 양자우물의 가운데에 존재하게 되고, 상태함수들의 공간 분포가 떨어져 있는 경우보다 PL 전이 peak의 폭이 작아지게 된다. 원 모양 데이터인 PL 전이 peak 폭이 최소가 되는 역방향 전압을 역시 이차 함수로 근사하여 구하면 V_{FB} 와 2.5 % 차이밖에 나지 않는다. 물론 PL 전이 peak의 폭의 변화는 이차 함수보다 더 복잡하게 변할 것이다. PL의 크기도 역방향 전압의 크기가 커지며 단순 감소하는 형태가 아니라 flat band 근처에서 oscillator 크기가 커지며 PL 크기가 유지되다가 다시 감소하는 형태를 보여주고 있다. 역방향 전압이 커지며 양자 우물 장벽층으로 터널링되어 나가버리는 효과를 압도하지는 못하여 PL 전이 에너지와 같은 최대치를 보여주지는 않았지만 flat band가 존재한다는 사실을 뒷받침하기에 충분한 변화이다.

이 flat band 조건을 이용하여 piezoelectric field의 크기를 구하기 위하여 다음 식들을 사용하였다 [9]. 양자우물의 우물층, 즉 InGaN 층에 작용하는 총 전기장을 E_{total} 이라 하면,

$$E_{total} = E_i - V_{appl}/(d_u + d_d) + E_{piezo} \quad (2)$$

이 되고, 여기서 E_i 는 공핍층과 활성층에 작용하는 pn 접합의 내부 전기장, V_{appl} 는 바이어스 전압, E_{piezo} 는 양자 우물층의 piezoelectric field이며, d_u 와 d_d 는 각각 undoped된 활성층과 공핍층의 두께이다. 또한 pn 접합 다이오드의 built-in 전압 V_{bi} 는

$$V_{bi} = E_i \cdot (d_u + d_d) + E_{piezo} \cdot NL_w \quad (3)$$

이며 여기서 N 은 양자우물의 갯수, L_w 는 양자우물의 두께이다. 식 (2), (3) 은 양자 우물층에만 변형이 일어난 경우에 InGaN 층의 E_{piezo} 를 구하기 위해 사용되었지만[9], 본 연구에서처럼 장벽층에도 변형이 일어난 경우에도 장벽층 변형의 효과가 E_i 에 포함되므로 E_{piezo} 값이 InGaN 층의 piezoelectric field의 값을 정확하게 나타내고 있다. Flat band 조건이 만족되면 $E_{total} = 0$ 이 되고 이때의 바이어스 전압을 V_{FB} 라고 하면 다음 식에서 InGaN 층의 piezoelectric field 값을 구할 수 있다.

$$E_{piezo} = - \frac{V_{bi} - V_{FB}}{d_u + d_d - NL_w} \quad (4)$$

Built-in 전압의 값을 구하기 위해서 시료에 순방향 전압을 걸어주며 EL 스펙트럼들을 측정하였다. 전압에 따른 EL peak 에너지 값이 그림 4에 보여진다. 순방향 전압이 증가하며 그림 1(c)와 같이 pn 접합의 p층과 n층 사이의 전압차이가 줄어들게 되고, 양자우물 내의 전자와 정공의 에너지 차이는 점점 줄어들게 된다. 이 현상이 그림 4의 +2.4 V에서 +3.0 V 까지의 바이어스 상태에서 나타나고 있다. 순방향 전압이 built-in 전압에 이르게 되면 p층과 n층이 같은 에너지 높이에 이르게 되고, 바이어스 전압을 증가시키더라도 더 이상의 band bending이 일어나지 않아 양자우물 내의 전자와 정공의 에너지 차이의 변화를 보이지 않는다. EL peak의 에너지 변화가 매우 적어지기 시작한 +3.1 V가 built-in 전압이고, 전압을 더 증가시킬 때 높은 에너지쪽으로 EL peak이 약간 이동하는 것은 band filling 효과로 생각된다. $V_{FB} = -8.15$ V에서 공핍층의 두께 d_d 는 참고문헌 14의 그림 2에서 보여진 p-i-n 구조의 공핍층의 두께 계산 결과를 참고하여 $d_d = 44$ nm를 사용하였다.

$V_{bi} = +3.1$ V, $d_u = 75$ nm, $NL_w = 15$ nm 를 이용하면 $E_{piezo} = -1.08$ MV/cm 을 얻을 수 있다. 이 값은 우리 시료와 비슷한 In composition을 가진 (In_{0.15}Ga_{0.85}N) 시료의 -2.1 MV/cm[11], 참고문헌 14에서 다시 계산된 참고문헌 9의 시료의 값인 -2.6 MV/cm, In_{0.1}Ga_{0.9}N에서의 값을 구한 -1.9 MV/cm[14] 등보다 50 % 이상 piezoelectric field가 감소하였음을 보여준다. 이는 초격자 buffer층에 의하여 활성층의 격자 상수가 GaN의 값에서 InGaN 쪽으로 이동하여서 양자 우물층의 변형을

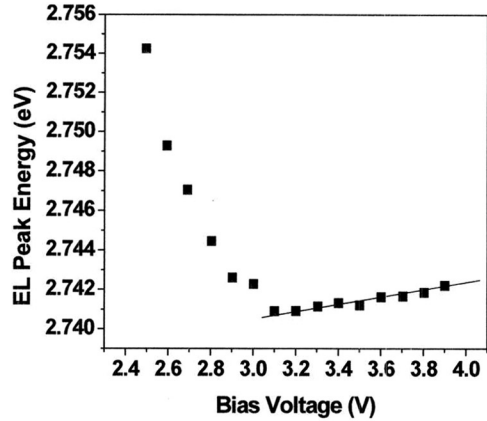


그림 4. 바이어스 전압의 변화에 따른 EL peak 에너지의 변화. 순방향 전압이 커지며 QCSE 때문에 에너지가 감소하다가 band bending이 끝나는 built-in 전압과 같은 위치에서 에너지 변화가 적어진다.

Fig. 4. The change of EL peak energy depending on different bias voltages. The peak energy decreases as the forward bias increases due to the QCSE. When the bias voltage is bigger than the built-in potential, the energy increases to a small extent.

줄인 결과로 생각된다. X-ray 회절이나 투과 전자 현미경 등의 실험을 진행하여 구조적인 데이터를 추가로 얻으려 한다.

4. 결론

InGaN/GaN 양자 우물을 이용한 광소자에서 문제점으로 지적되고 있는 piezoelectric field에 의한 효과를 줄이기 위하여 InGaN/GaN 초격자층을 buffer로 사용한 시료의 특성을 조사하였다. 역방향 전압을 걸어주며 PL을 측정하고, PL peak의 에너지, 폭, 크기의 전압에 따른 변화를 관찰하여 정확한 flat band 조건을 알아내었다. 실험을 통해 얻은 flat band를 만드는 전압, built-in 전압 등을 이용하여 본 시료의 양자 우물층인 In_{0.15}Ga_{0.85}N 층에서의 piezoelectric field 값이 -1.08 MV/cm 임을 구하였다. 이 값은 다른 연구 결과들에 비해 반 이상 감소한 값으로, 초격자를 사용한 시료에서 양자

우물층의 변형을 줄일 수 있음을 보여준다. 양자 우물층 변형의 감소는 순방향 전압 상태의 전자와 정공의 oscillator strength를 증가 시키므로 광소자의 효율 제고에 유용하게 쓰일 수 있다.

감사의 글

이 연구는 2008년 한국외국어대학교 학술연구비 지원에 의해 이루어진 것입니다.

참고 문헌

- [1] S. Nakamura and S. F. Chichibu (eds.), "Introduction to nitride semiconductor blue lasers and light emitting diodes", Taylor & Francis, London and New York, p. 317, 2000.
- [2] O.-H. Nam, M. D. Bremser, T. S. Zheleva, and R. F. Davis, "Lateral epitaxy of low defect density GaN layers via organometallic vapor phase epitaxy", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 71, No. 18, p. 2638, 1997.
- [3] H. Miyake, R. Takeuchi, K. Hiramatsu, H. Naoi, Y. Iyechika, T. Maeda, T. Riemann, F. Bertram, and J. Christen, "High quality GaN grown by facet-controlled ELO (FACELO) technique", *Phys. Stat. Solidi A*, Vol. 194, No. 2, p. 545, 2002.
- [4] Y. H. Cho, G. H. Gainer, A. J. Fischer, J. J. Song, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, "S-shaped temperature-dependent emission shift and carrier dynamics in InGaN/GaN multiple quantum wells", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 73, No. 10, p. 1370, 1998.
- [5] X. A. Cao, S. F. LeBoeuf, L. B. Rowland, C. H. Yan, and H. Liu, "Temperature-dependent emission intensity and energy shift in InGaN/GaN multiple-quantum-well light-emitting diodes", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 82, No. 21, p. 3614, 2003.
- [6] J. H. Na, R. A. Taylor, K. H. Lee, T. Wang, A. Tahraoui, P. Parbrook, A. M. Fox, S. N. Yi, Y. S. Park, J. W. Choi, and J. S. Lee, "Dependence of carrier localization in InGaN/GaN multiple-quantum wells on well thickness", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 89, p. 253120, 2006.
- [7] C. J. Humphreys, "Does In form In-rich clusters in InGaN quantum wells?", *Philosophical Magazine*, Vol. 87, No. 13, p. 1971, 2007.
- [8] M. S. Shur and M. A. Khan, "GaN/AlGaIn heterostructure devices: photodetectors and field-effect transistors", *Mat. Res. Soc. Bull.*, Vol. 22, No. 2, p. 44, 1997.
- [9] T. Takeuchi, C. Wetzel, S. Yamaguchi, H. Sakai, H. Amano, I. Akasaki, Y. Kaneko, S. Nakagawa, Y. Yamaoka, and N. Yamada, "Determination of piezoelectric fields in strained GaInN quantum wells using the quantum-confined Stark effect", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 73, No. 12, p. 1691, 1998.
- [10] S. F. Chichibu, A. C. Abare, M. S. Minsky, S. Keller, S. B. Fleischer, J. E. Bowers, E. Hu, U. K. Mishra, L. A. Coldren, S. P. DenBaars, and T. Sota, "Effective band gap inhomogeneity and piezoelectric field in InGaN/GaN multiquantum well structures", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 73, No. 14, p. 2006, 1998.
- [11] Y. D. Jho, J. S. Yahng, E. Oh, and D. S. Kim, "Measurement of piezoelectric field and tunneling times in strongly biased InGaN/GaN quantum wells", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 79, No. 8, p. 1130, 2001.
- [12] C. Y. Lai, T. M. Hsu, W.-H. Chang, K.-U. Tseng, C.-M. Lee, C.-C. Chuo, and J.-I. Chyi, "Direct measurement of piezoelectric field in $\text{In}_{0.23}\text{Ga}_{0.77}\text{N}/\text{GaN}$ multiple quantum wells by electrotransmission spectroscopy", *J. Appl. Phys.*, Vol. 91, No. 1, p. 531, 2002.
- [13] P. T. Barletta, E. A. Berkman, B. F. Moody, N. A. El-Masry, A. M. Emara, M. J. Reed, and S. M. Bedair, "Development of green, yellow, and amber light emitting diodes using InGaN multiple quantum well structures", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 90, p. 151109, 2007.
- [14] I. H. Brown, I. A. Pope, P. M. Smowton, P.

- Blood, J. D. Thomson, W. W. Chow, D. P. Bour, and M. Kneissl, "Determination of the piezoelectric field in InGaN quantum wells", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 86, p. 131108, 2005.
- [15] 김경찬, 김태근, "In_xGa_{1-x}N/GaN 양자우물 구조의 수치 해석을 이용한 압전장 평가", *전기전자재료학회논문지*, 17권, 1호, p. 89, 2004.
- [16] L. Dai, B. Zhang, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, "Comparison of optical transitions in InGaN quantum well structures and microdisks", *J. Appl. Phys.*, Vol. 89, No. 9, p. 4951, 2001.
- [17] H. Masui, M. C. Schmidt, A. Chakraborty, S. Nakamura, and S. P. DenBaars, "Electroluminescent and electrical characteristics of polar and nonpolar InGaN/GaN light-emitting diodes at low temperature", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 45, No. 10A, p. 7661, 2006.
- [18] M. Kubota, K. Okamoto, T. Tanaka, and H. Ohta, "Temperature dependence of polarized photoluminescence from nonpolar m-plane InGaN multiple quantum wells for blue laser diodes", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 92, p. 011920, 2008.