

In_xGa_{1-x}N/GaN 박막의 광학적 특성

전 용 기 · 정 상 조* †

호원대학교 교양과

*(주)ATC 기술연구소

Optical properties of In_xGa_{1-x}N/GaN epilayers

Yong-Ki Jun and Sang-Jo Chung* †

Department of Liberal Art and Science, Howon University

*Applied Technology Corporation, R & D Center

(2001년 10월 20일 받음, 2002년 1월 4일 최종수정본 받음)

Abstract We have grown undoped In_xGa_{1-x}N, In_xGa_{1-x}N:Si and In_{0.1}Ga_{0.9}N:Zn thin films by MOCVD at temperature between 880 and 710°C which endows various In composition in the epilayer from 0.07 to 0.22 as examined using X-ray diffraction, optical absorption(OA), photocurrent (PC) and photoluminescence (PL). The In molar fraction estimated from PL results is higher than that from the OA, PC, and X-ray data for X≤0.22, which may be caused by phase separation. However, the In molar fraction estimated by X-ray diffraction, OA, PC and PL for In_xGa_{1-x}N:Si does not show discrepancy. With the appropriate Zn doping in undoped In_{0.1}Ga_{0.9}N, the emission peak is shifted from 3.15 eV which originates from the band edge emission peak to 2.65 eV which resulted from the conduction band to acceptor transition due to a deep acceptor level.

Key words: optical absorption, photocurrent, phase separation, In_xGa_{1-x}N surfactant

1. 서 론

GaN를 기반으로 하는 III-V 족 질화물 반도체는 넓은 띠틈을 갖는 직접천이형 반도체로서 GaN, AlN 및 InN의 합금을 형성하여 에너지 띠틈을 1.9 eV (InN)로부터 3.4 eV (GaN) 및 6.2 eV (AlN) 까지 광범위하게 조절할 수 있기 때문에 가시광 영역 및 자외선 영역의 단파장 광소자의 응용이 가능한 물질이다.^{1,2)} 특히 In_xGa_{1-x}N은 발광 다이오드(LED)³⁾, 레이저 다이오드(LD)⁴⁾ 등의 광전소자 응용에 있어서 인듐 조성 (composition)에 따라 띠틈을 2.0 eV에서 3.4 eV 까지 변화시킬 수 있기 때문에 청색 발광의 활성층 (active layer)으로서 매우 중요한 물질이다.

최근에 In_xGa_{1-x}N 박막에 대한 발광 특성을 밝히기 위한 연구들이 활발히 이루어지고는 있으나 In_xGa_{1-x}N 합금은 성장하는데 있어서 InN와 GaN의 격자 불일치 (lattice mismatch)로 기인된 상분리 (phase separation)⁵⁾ 현상과 성분 불균일성 (composition inhomogeneity)⁶⁾, 표면 갈라놓기 (surface segregation)⁷⁾, 그리고 깊은 준위와 관련된 발광 열개 (mechanism) 등은 아직까지도 일관되게 설명되지 못하고 있다. 그러므로 In_xGa_{1-x}N 박막의 광학적 특성을 이해하는 일은 발광 효율이 높은 양질의 시료를 얻고 이를 소자에 응용하는데 있어서도 꼭 필요하다. 따라서 본 연구에서는 MOCVD를 이용하여 의도적으로 불순물을 첨가

하지 않은 In_xGa_{1-x}N와 불순물로 Si, Zn을 의도적으로 첨가한 In_xGa_{1-x}N 박막을 각각 성장하였다. 성장된 시료들에 대한 광학적 특성을 이해하기 위해 광흡수 (OA), 광전류 (PC), 광발광 (PL) 등을 측정하여 인듐 조성에 따른 에너지 띠틈과 의도적으로 첨가한 불순물의 효과 등을 분석하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용된 모든 시료들은 MOCVD법을 이용하여 사파이어 기판 위에 성장된 것들이다. 시료의 성장과정은 다음과 같다. 먼저 수소분위기 속에서 1100°C의 온도로 기판을 표면 클리닝 한 다음, 500~570°C 온도에서 25~40 nm 두께로 GaN 완충층을 성장하였다. 다시 온도를 1080°C로 올려 2 μm 두께로 undoped GaN 층을 성장시킨 다음, 연속적으로 GaN층 위에 In_xGa_{1-x}N 박막층을 710~880°C 사이의 온도에서 성장하였다. 성장된 시료의 두께를 0.1~0.3 μm까지 변화시켰다.

성장된 In_xGa_{1-x}N 박막의 조성 및 광학적 특성을 조사하기 위해 광흡수, 광전류, 광발광을 측정하였다. 광흡수 특성은 UV-VIS-NIR spectrophotometer (Hitach, U-3501)를 사용하여 300~900 nm의 파장영역에서 측정하였다. 광전류 측정에서 시료의 전극은 자유전자와 자유정공의 재결합으로 인한 광전류의 감소현상을 줄이기 위해 빛의

† E-mail: chungsj40@hanmail.net

이용효율이 높고 표면에 평행한 전기장을 만들도록 빛을 쪼이는 시료의 앞면에 두 개의 전극을 부착시킨 전면 2전극 방법으로 인듐을 사용하여 제작하였다. 광전류 측정에서 광원은 120 V-1000 W 텅스텐 할로겐 램프와 일본 Shimadzu A QV 50 spectrometer를 사용하였고, 각 파장에서 광원의 세기는 110 V 3 kW 가변 변압기로 조절하여 일정한 값으로 규격화하였다. 시료에 인가된 바이어스 전압은 전전지를 조합하여 0~3 volt 사이에서 적절한 값을 찾아 사용하였다. 광전류는 일본 TOA PM-18R DC micro-volt ammeter를 사용하여 측정하였으며 전류계의 출력은 X-Y 기록계 (Dupont 990 thermal analyzer용)에 연결하여 기록하였다. 광발광 측정에 사용된 광원은 파장이 325 nm인 He-Cd laser 이었고, 1800 groves/nm의 holographic grating이 장착된 double monochromator를 사용하여 300~630 nm의 파장영역에서 PL 스펙트럼을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 인듐 조성이 10% 정도인 의도적으로 불순물을 첨가하지 않은 In_{0.07}Ga_{0.93}N 박막에 대하여 실온에서 측정된 OA와 PC, PL 스펙트럼을 비교하여 나타낸 것이다. 그림에서 보듯이 3.45 eV 위치에 있는 OA와 PC 피크는 GaN 띠 간격과 관련된 것이며, 3.20 eV 위치에 있는 PC와 PL 피크는 In_{0.07}Ga_{0.93}N 박막의 띠 간격에 해당하는 것으로 생각된다. 또한 OA 측정 결과에서도 흡수가 개시 (onset) 되는 부분이 PC와 PL에서 얻어진 결과와 잘 일치함을 볼 수 있다. PL 결과로부터 인듐 조성에 대한 평가는 $E_g(x) = xE_{g, InN} + (1-x)E_{g, GaN} - bx(1-x)$ 에 의해 결정된 것이다. 여기에서 $E_{g, GaN}$ 는 GaN 띠간격, $E_{g, InN}$ 는 InN 띠간격, b는 concentration-independent bowing parameter

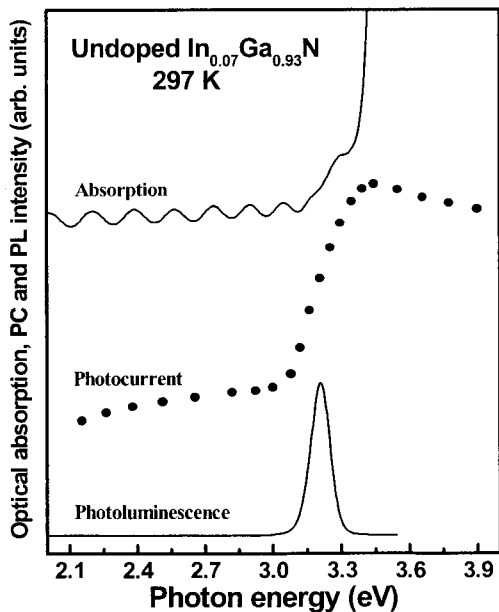


Fig. 1. Optical absorption, photocurrent and photoluminescence spectra of undoped In_{0.07}Ga_{0.93}N epilayer.

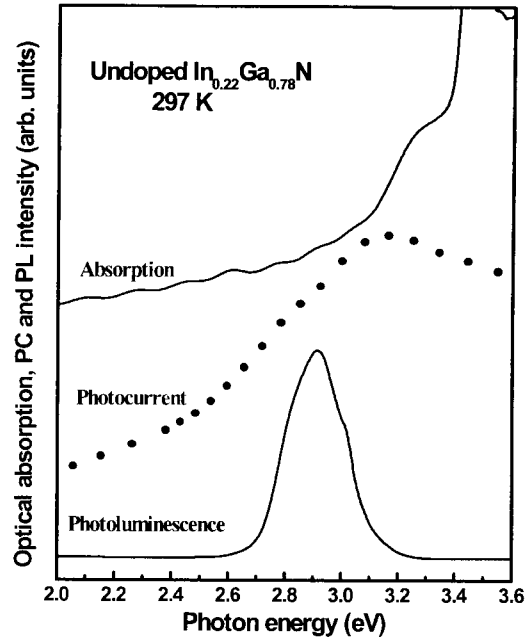


Fig. 2. Optical absorption, photocurrent and photoluminescence spectra of undoped In_{0.22}Ga_{0.78}N epilayer.

로 이들 값은 각각 3.4 eV⁸⁾, 1.9 eV⁹⁾와 1¹⁰⁾을 적용하였다.

Fig. 2는 인듐 조성이 상대적으로 많고 의도적으로 불순물을 도핑하지 않은 In_{0.22}Ga_{0.78}N 박막에 대한 OA와 PC, PL 스펙트럼을 비교하여 나타낸 것이다. OA와 PC에서 얻어진 3.11 eV 위치에 있는 피크들은 실질적인 InGaN 박막의 띠 간격에 해당하는 것이며, PL에서 보이는 주 피크와 PC에서 보이는 2.91 eV 위치의 피크는 In_{0.22}Ga_{0.78}N 박막의 띠 간격과는 무관한 것으로 보인다. 이 피크는 Fig. 1에서 보여주었듯이 인듐 조성이 10% 이하로 적게 들어간 시료의 경우에는 OA와 PC, PL의 결과가 모두 잘 일치하고 있으나 인듐 조성이 22% 일 때는 OA와 PC 및 PL 피크가 약 250 meV 정도 차이가 나타났다. 이러한 현상은 이미 여러 논문에서 보고되었듯이^{11~13)} 인듐 성분이 증가함에 따라 발생하는 상분리 현상과 관련된 것으로 보인다. 즉, 의도적으로 도핑하지 않은 In_xGa_{1-x}N 박막의 경우 인듐 조성이 증가할수록 발광 기구는 In-rich 영역에서의 엑시톤의 재결합에 의한 것으로 생각된다. 그러나 In_xGa_{1-x}N 박막에 Si를 도핑 할 경우 이러한 현상은 현저하게 사라졌다.

일반적으로 결정성장에서 PL 세기 증가와 결정의 질 향상을 위해 InGaN 활성층에 Si를 도핑을 하게 된다.¹⁴⁾ Si이 도핑 된 InGaN에 대해서 인듐 조성의 평가는 XRD 결과로부터 결정하였는데 이를 Fig. 3에 나타내었다. 인듐 조성을 변화하여 측정된 결과 그림에서 보듯이 GaN과 InGaN 피크들이 뚜렷하게 분리되어 나타났는데, 이 결과를 Vegard's law ; $2\theta(x) = x2\theta(InN) + (1-x)2\theta(GaN)$ 에 적용하여 결정된 인듐 조성의 값은 PL의 결과로부터 얻어진 성분 값과 거의 일치함을 알 수 있었다.

Fig. 4는 Si이 도핑 된 In_{0.1}Ga_{0.9}N 박막에 대하여 OA와 PC, PL을 실온에서 측정된 결과를 비교한 것이다. OA와

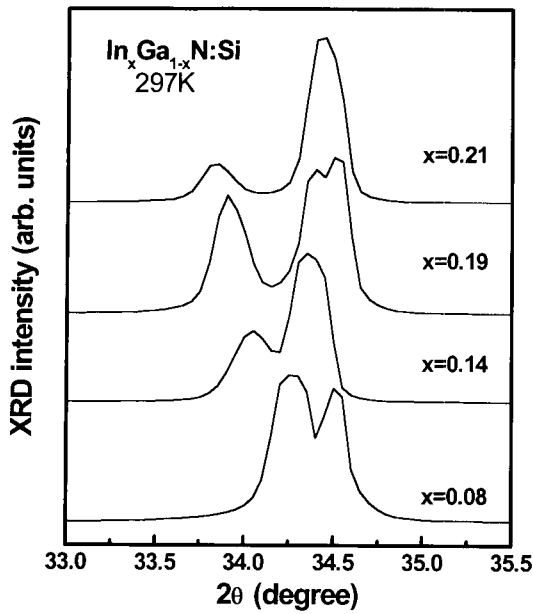


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of Si-doped $In_xGa_{1-x}N$ epilayers.

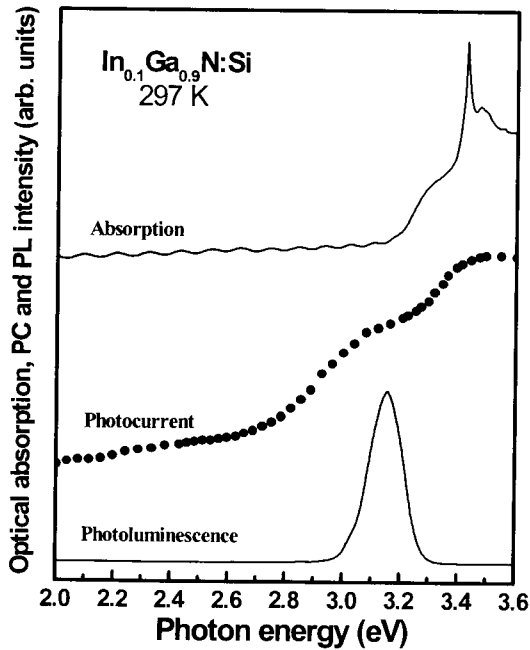


Fig. 4. Optical absorption, photocurrent and photoluminescence spectra of Si-doped $In_{0.1}Ga_{0.9}N$ epilayer.

PC에서 측정된 3.43 eV 위치는 GaN 띠 간격과 관련된 것이고, 3.15 eV 위치에 있는 피크는 $In_{0.1}Ga_{0.9}N:Si$ 박막의 띠 간격에 해당하는 것으로 이 피크는 OA나 PC, PL 모두에서 잘 일치함을 볼 수 있다. 앞의 Fig. 1, 2에서 보았듯이 의도적으로 불순물을 첨가하지 않은 InGaN의 경우 인듐 조성이 10% 이하 일 경우, OA와 PC, PL을 측정할 InGaN 띠 간격은 모두 일치하였으나 반면에 인듐 조성을 20% 이상으로 증가하여 OA와 PL을 측정할 결과에서는 InGaN 띠 간격 약 250 meV 정도의 차이가 있었음을 알 수 있었다. 따라서 Si을 도핑한 InGaN 박막의 경우 인듐

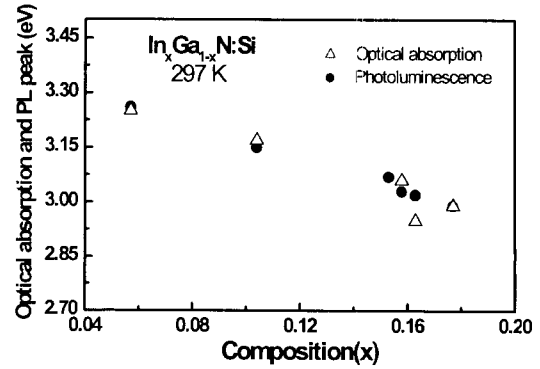


Fig. 5. Composition dependences of optical absorption and photoluminescence of Si-doped $In_xGa_{1-x}N$ epilayers.

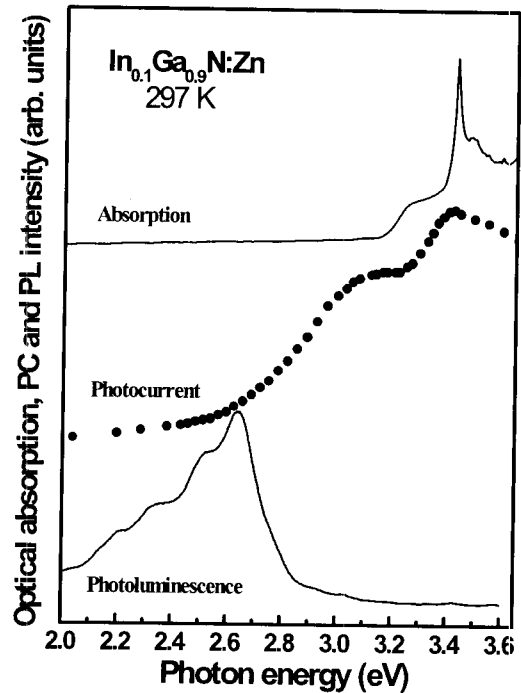


Fig. 6. Optical absorption, photocurrent and photoluminescence spectra of Zn-doped $In_{0.1}Ga_{0.9}N$ epilayer.

조성 증가에 따른 이같은 특성을 알아보기 위해서 인듐 조성을 변화하여 OA와 PL을 측정하였다.

Fig. 5는 Si이 도핑된 $In_{0.1}Ga_{0.9}N$ 박막의 경우 인듐 조성 증가에 따른 OA와 PL 결과를 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 Si이 도핑된 $In_{0.1}Ga_{0.9}N$ 박막의 경우에는 인듐 함량이 증가하여도 OA와 PL의 결과가 거의 일치함을 볼 수 있다. 따라서 이 같은 현상은 Si을 도핑 함으로써 InGaN에서 PL 피크가 실제 인듐 성분보다 더 작은 위치에서 나오는 이유로 지적되는 potential fluctuation, In island의 형성, 상분리 현상등을 줄여주는 계면활성제(surfactant) 효과가 있는 것으로 분석되어 진다.

일반적으로 발광중심(light-emitting center)의 효과를 얻기 위해서 InGaN 활성층에 Zn을 도핑하게 된다. Fig. 6은 Zn가 도핑된 $In_{0.1}Ga_{0.9}N$ 박막에 대해 실온에서 측정된 OA와 PC, PL 스펙트럼을 나타낸 것이다. 3.42 eV의 피크들은 GaN 띠 간격이며, 3.15 eV의 피크들은 $In_{0.1}Ga_{0.9}N$

박막의 띠 간격에 해당하는 것이다. PL 스펙트럼에서 2.65 eV 위치한 피크는 Zn와 관련된 것으로 생각된다. 최근 Lee⁶⁾ 등이 의도적으로 불순물을 첨가하지 않은 In_{0.1}Ga_{0.9}N와 불순물로 Zn와 Si-Zn을 같이 도핑한 시료에 대하여 보고하였는데, 이들 보고에 의하면 In_{0.1}Ga_{0.9}N:Zn의 PL 실험에서 2.69 eV의 PL 피크는 깊은 받개 준위가 형성되어 전도대에서 이 받개 준위로 전이한다고 분석하고 있다. 따라서 본 논문에서 관측된 2.65 eV의 PL 피크는 이와 잘 일치하는 것으로 보아 전도대에서 Zn 받개준위로 전이되는 것으로 판단된다.

4. 결 론

MOCVD 방법으로 성장된 In_xGa_{1-x}N 박막에 대하여 상온에서 OA와 PC, PL을 측정하였다. 인듐 조성이 10% 이하인 의도적으로 불순물을 도핑하지 않은 In_{0.07}Ga_{0.93}N 박막의 경우에는 OA와 PC, PL를 측정된 결과 In_{0.07}Ga_{0.93}N 박막의 띠간격이 모두 잘 일치하였고, 인듐 조성이 상대적으로 큰 In_{0.22}Ga_{0.78}N 박막의 경우에는 OA와 PC, PL 스펙트럼을 측정된 결과 인듐 조성이 20% 이상 증가함에 따라 OA와 PC에서 결정된 In_{0.22}Ga_{0.78}N 박막의 띠간격이 PL에서는 약 250 meV의 차이가 나타났는데 이것은 상분리와 관련된 것으로 분석되었다. 그러나 Si이 도핑된 In_xGa_{1-x}N 박막의 경우에는 인듐 조성비가 증가하여도 OA와 PC, PL에서 측정된 결과가 모두 잘 일치함을 볼 수 있었는데 이는 Si을 도핑 함으로써 InGaN에서 PL 피크가 실제 인듐 조성보다 더 작은 위치에서 나오는 효과를 줄일 수 있는 것으로 설명되어졌다. 또한 Zn가 도핑된 In_{0.1}Ga_{0.9}N 박막에 대하여 OA와 PC, PL 측정된 결과 PL에서 2.65 eV의 피크는 Zn와 관련된 것으로서 이는 전도대에서 Zn 받개 준위로 전이하기 때문이다.

감사의 글

본 연구는 2001년도 호원대학교 교내연구비 지원에 의해 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa and S. Nagahama,

- Jpn. J. Appl. Phys. **34**, L797 (1995)
2. S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahama, T. Yamada, and T. Mukai, Jpn. J. Appl. Phys. Lett. **34**, L1332 (1995)
3. S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, Appl. Phys. Lett. **64**, 1687 (1994)
4. S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahama, N. Iwata, T. Yamada, and T. Matsushita, H. Kiyoka, and Y. Swgimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **35**, L74 (1995), Appl. Phys. Lett. **68**, 2105 (1996)
5. R. Singh, D. Doppalapudi, T.D. Moustakas, L.T. Romano, Appl. Phys. Lett. **70**, 1087 (1997).
6. Y. Narukawa, Y. Kawakami, M. Funato, S. Fijita, S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. **70**, 981 (1997).
7. B. Yang, O. Brandt, B. Jenichen, J. Mulhauser, K.H. Ploog, J. Appl. Phys. **82**, 1918 (1997).
8. B. Monemar, Phys. Rev. **B10**, 676 (1974)
9. W.M. Yim, E.J. Stofko, P.J. Zanzucchi, J.I. Pankove, M. Ettenberg and S.L. Gilbert, J. Appl. Phys. **44**, 292 (1973)
10. K. Itoh, H. Amano, K. Hiramatsu and I. Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, 1604 (1991); K. Itoh, H. Amano, K. Hiramatsu and I. Akasaki, J. Cryst. Growth. **104**, 533 (1990)
11. N. Yoshimoto, T. Matsuoko, T. Sasaki, A. Kasui, Appl. Phys. Lett. **59**, 2251 (1991)
12. N. grandjean, J. Massies, M. Leroux, P. DeMierry, Appl. Phys. Lett. **72**, 3190 (1998)
13. H. Kanie, N. Tsukamoto, H. Koami, T. Totsuka, J. Crystal Growth. **189**, 52 (1998)
14. K. Uchida, T. Tang, S. Goto, T. Mishima, A. Niwa, and J. Gotoh, Appl. Phys. Lett. **74**, 1153 (1999)
15. S. Tanaka, S. Jwai, and Y. Aoyagi, Appl. Phys. Lett. **69**, 4096 (1998)
16. Cheul-Ro Lee, Jae-Young Leem, Sam Kyu Noh, Sung-Jin Son, Ki-Young Leem, J. Crystal Growth. **197**, 78 (1999)