

불소계열 플라즈마 처리를 통한 수직형 UV LED용 ITO/Al 기반 반사전극의 전기적/광학적 특성 최적화

신기섭¹, 김동윤¹, 김태근^{1,a}

¹ 고려대학교 전기전자전파공학과

Optimization of Electrical/Optical Properties of ITO/Al Based Reflector for Vertical-type UV LEDs via SF₆ Plasma Treatments

Ki Seob Shin¹, Dong Yoon Kim¹, and Tae Geun Kim^{1,a}

¹ School of Electrical Engineering, Korea University, Seoul 136-713, Korea

(Received July 29, 2011; Revised September 23, 2011; Accepted October 22, 2011)

Abstract: We optimize electrical and optical properties of thermal and SF₆ plasma treated indium tin oxide (ITO)/Al based reflector for high-power ultraviolet (UV) light-emitting diodes (LEDs). After thermal and SF₆ plasma treatments of ITO/Al reflector, the specific contact resistance decreased from $1.04 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}^2$ to $9.12 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$, while the reflectance increased from 58% to 70% at the 365 nm wavelength. The low resistance and high reflectance of ITO/Al reflector are attributed to the reduced Schottky barrier height (SBH) between the ITO and AlGaIn by large electronegativity of fluorine species and reduced interface roughness between the ITO and Al, respectively.

Keywords: Ultraviolet light-emitting diodes, Plasma treatment, Schottky barrier height

1. 서론

질화갈륨계 (GaN) 화합물 반도체 기반의 자외선 발광다이오드는 백색 조명, 살균, 소독 등의 의학 분야, 정화, 정수 등의 생화학분야와 같은 다양한 분야에서 중요한 요소로 이용되고 있다 [1]. 하지만 이와 같이 다양한 응용분야가 있음에도 GaN 기반 LED용 기판의 부패, 전류 몰림 (current crowding) [2] 현상에 의한 동작전압 및 온도상승 문제, 특히 알루미늄 (Al) 조성비가 증가할수록 AlGaIn 층의 결정질 저하로 인한 낮은 양자효율과 내부의 광 흡수 등의 문제로 인한 낮은 광 추출효율 때문에 아직까지 해결해야 할 많은 과제가 있다 [3]. 낮은 광 추출효율 문제를

해결하기 위하여 표면 요철 형성 (surface texturing) [4], 광 결정 (photonic crystal) [5] 등을 구현하여 활성층 (active layer)에서 생성된 빛이 LED 벽면에서 전반사되는 것을 줄이는 연구가 진행되고 있고, 기하학적인 구조 변형으로 chip shaping이나 수직형 구조와 같은 접근도 이루어지고 있다.

수직형 LED 구조의 경우 기존 epi-up 구조와 달리 전극이 수직하게 구성되어 있기 때문에 전류 몰림 현상이 없어 전류 퍼짐 (current spreading)이 용이하며, 빛이 나올 수 있는 면적이 넓어지고 bottom 쪽에 반사율이 높은 은 (Ag)이나 알루미늄 (Al) 등의 금속을 사용하여 광을 top 쪽으로 반사시켜서 광 추출효율을 높일 수 있는 장점이 있다 [6].

LED의 낮은 광 추출효율 문제를 구조적인 측면인

a. Corresponding author; tgkim1@korea.ac.kr

수직형 구조로 해결하고자 할 때 외부 발광효율을 증가시키기 위한 전극 물질 및 물성에 대한 연구가 병행되어야 한다. 단파장으로 갈수록 Al의 함량이 증가하여 자체 일함수가 커지기 때문에 낮은 구동전압을 위한 오믹접촉 형성이 어렵다. 또한 단파장 영역에서 높은 반사율과 신뢰성이 보장되는 물질이 필요하다. 따라서 오믹접촉이 가능하며 반사율이 높은 저저항성, 고반사의 반사전극에 대한 연구가 필요하다.

본 연구에서는 질화갈륨 계열의 LED 소자에서 발생하는 낮은 광량 문제를 해결하고 광 추출효율을 높이기 위하여 투과도가 우수한 ITO (indium tin oxide)를 투명 전도산화물 (transparent conductive oxide, TCO) [7]로써 반사막 전면에 중간층으로 삽입하고, 단파장 영역에서 반사율이 우수한 Al을 반사막으로 사용하는 방법을 제안하였다. 또한, ITO의 일함수가 p형 AlGaN에 비해 낮은 문제점을 해결하기 위하여 SF₆ 플라즈마 처리를 수행하였다 [8]. 이로써 SF₆ 플라즈마 처리하여 ITO/Al 형태의 p형 질화갈륨계의 SBH (shottky barrier height) 특성과 자외선 파장 대역에서의 전기적, 광학적 특성에 미치는 반사전극구조에 대하여 연구를 수행하였다.

2. 실험 방법

본 연구는 그림 1의 개념도를 통해 보여주고 있듯이, p형 AlGaN 위에 ITO를 증착하여 열처리를 하고 SF₆ 플라즈마 처리 후 Al을 증착하는 것으로 전기적, 광학적 특성이 향상된 반사전극의 특성 최적화를 목적으로 하고 있다. ITO 박막은 In₂O₃의 산화인듐에 주석 (Sn)을 도핑하여 형성된 형태로 산소의 비화학양론 구성비와 Sn의 첨가로 발생하는 잉여 전자에 의해서 비교적 낮은 저항을 갖게 되고 높은 밴드갭 에너지 (3.5-3.75 eV)로 인하여 가시광 영역에서 높은 투과도의 특성을 보인다.

이러한 ITO 박막의 최적화된 전기적, 광학적 특성을 확보하기 위하여 증착 동안 또는 증착 후 열처리 과정이 필수적이다. 열처리는 ITO 박막 증착 후에 박막의 재결정화에 영향을 미친다. 재결정 결과 metallic한 성질을 통해 전기적 특성을 얻을 수 있고, oxide한 성질을 통해 광학적 특성을 얻을 수 있는데 이 두 성질은 상충되는 관계를 가지고 있다 [9]. 따라서 최적의 전기적, 광학적 특성을 보이는 열처리 조건을 확보하는 것이 중요하다.

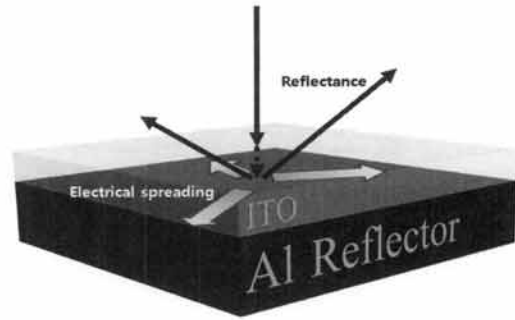


Fig. 1. Schematic diagram of ITO/Al based reflector.

ITO 박막은 진공도 10^{-7} Torr에서 p형 AlGaN 위에 electron beam evaporator를 이용하여 증착하였다. ITO target은 99.9% 순도의 In₂O₃:SnO₂ (90 wt%: 10 wt%)를 사용하였다. 증착률은 1 Å/s로 200 nm 까지 증착하였다. ITO 박막을 증착한 후에 최적의 전기적, 광학적 특성 조건을 확보하기 위해 600°C, 650°C, 700°C에서 RTA (rapid thermal annealing) 방법으로 대기 중에서 각각 5분 동안 열처리를 진행하였다. 그 후에 ITO의 표면을 SF₆ 가스로 플라즈마 처리하였다. 플라즈마 처리는 RIE (reactive ion etching) 방법으로 120 W의 power를 인가하여 30 sccm, 50 sccm 가스 유량과 10 mTorr의 chamber 압력에서 3분, 10분 동안 진행하였다.

이 실험에서 current-voltage (I-V) 특성을 측정하기 위하여 Keithly 4200을 사용하였고, 접촉 저항의 측정은 TLM (transfer length method)을 이용하였다. 그리고 ITO 박막에 plasma 처리를 한 후 표면 morphology를 분석하기 위하여 AFM (atomic force microscopy)을 이용하였고 ITO/Al 반사전극의 광학적 반사율은 300 nm에서 600 nm의 파장 대역에서 UV-visible spectrophotometer로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 ITO 박막의 상온, 600°C, 650°C, 700°C 각각의 열처리 온도에 따른 I-V 특성 결과를 보여주고 있다. 그림에서 보듯이 열처리에 따른 I-V 특성이 향상되었고, 650°C의 열처리 조건 시 접촉저항이 $1.04 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}^2$ 으로 가장 좋은 특성을 보였다. 이는 ITO를 열처리하게 되면 재결정화에 의해 전기적인 특성이 향상되지만 너무 고온에서는 In과 Sn의 산화가 증가하여 전기적인 특성이 나빠지기 때문이다.

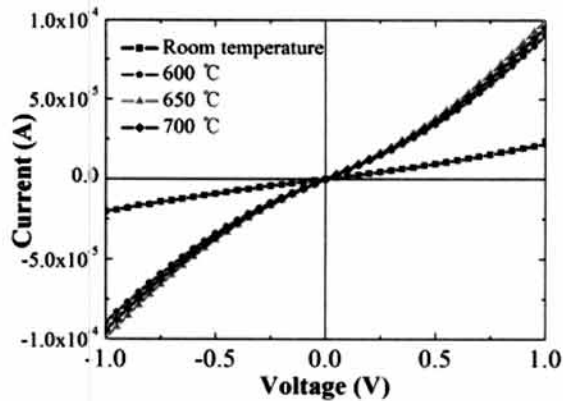


Fig. 2. Typical I-V characteristics measured from ITO contacts under different temperatures.

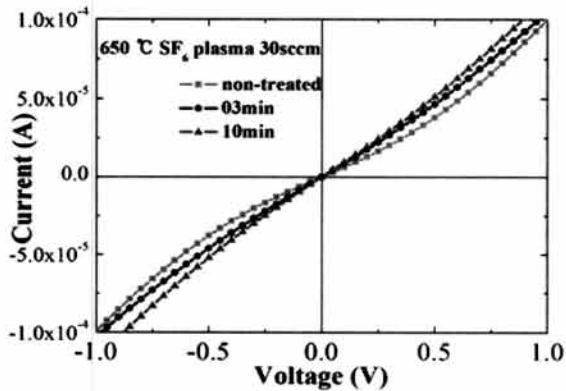


Fig. 3. Typical I-V characteristics measured from F-doped ITO contacts under different times.

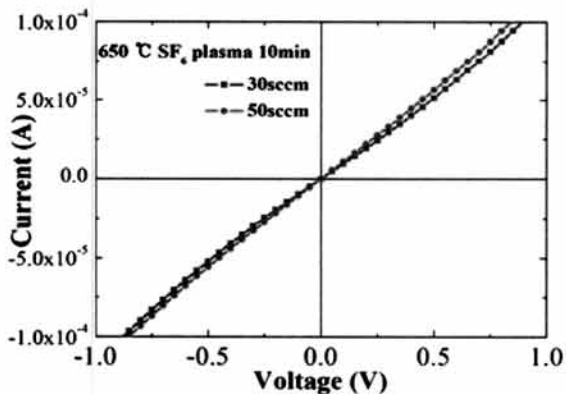


Fig. 4. Typical I-V characteristics measured from F-doped ITO contacts under different gas rates.

그림 3과 그림 4는 플라즈마 처리의 최적화 조건을

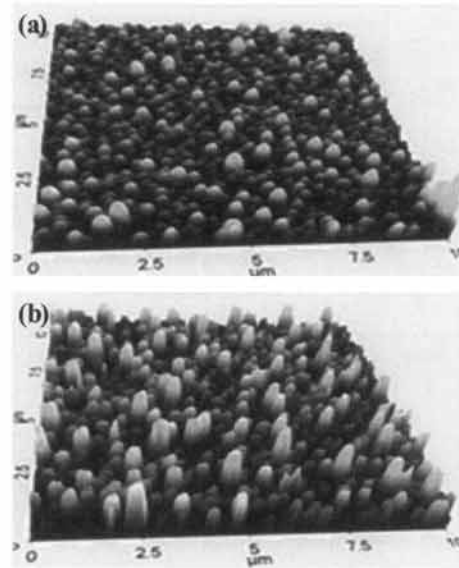


Fig. 5. AFM images of (a) SF₆-treated ITO surface and (b) non-treated ITO surface.

찾기 위해 플라즈마 시간, 플라즈마 유량에 따른 I-V 특성의 결과를 나타낸 것이다. 두 실험 결과 모두 플라즈마 처리하지 않은 시편에 비해 플라즈마 처리를 했을 경우 전기적 특성이 향상됨을 보여주고 있다.

그림 3은 플라즈마 시간에 따른 I-V 특성으로 TLM을 통해 측정된 접촉 저항은 플라즈마 처리하지 않은 것, 처리 시간 3분, 처리 시간 10분에 대하여 각각 1.04×10^{-3} , 1.02×10^{-3} , $9.36 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$ 의 결과를 보였다. 또한 그림 4를 통해 알 수 있듯이 플라즈마 유량을 30 sccm에서 50 sccm으로 증가시켰을 경우에도 마찬가지로 접촉저항이 9.36×10^{-4} , $9.12 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$ 로 감소함을 알 수 있었다.

이와 같이 SF₆ 플라즈마 처리 시 전기적 특성이 향상되는 것은 플라즈마 처리로 인하여 전기음성도가 큰 fluorine이 oxygen 자리를 대체해 전자들을 보다 강하게 구속하여 electron carrier concentration이 감소되기 때문이다 [8]. 이러한 ITO 내부의 electron carrier concentration 감소는 Fermi 에너지 준위가 밴드갭 에너지의 중앙으로 이동하게 되면서 ITO의 일함수를 증가시키게 된다. 따라서 ITO의 일함수 증가는 ITO와 p형 AlGaIn 사이의 일함수 차이를 줄이게 되어 p형 AlGaIn과 ITO 사이의 SBH를 감소시켜 전기적 특성을 향상시키게 되는 것이다.

그림 5는 SF₆ 플라즈마 처리된 ITO와 플라즈마 처리되지 않은 ITO의 표면 morphology 분석을 위한

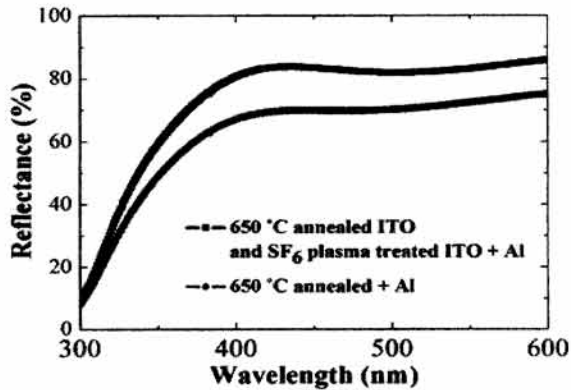


Fig. 6. Reflectance of the SF₆-treated ITO/Al based reflector and non-treated ITO/Al based reflector in the wavelength range from 300 nm to 600 nm.

AFM 이미지이다. 이 그림은 열처리로 생긴 인듐알갱이들의 모양과 크기가 플라즈마 처리에 영향을 받는 것을 보여주고 있다. ITO를 열처리하게 되면 원초적인 인듐 grain이 집합체를 형성하여 인듐 알갱이가 커져 표면의 거칠기가 증가하게 된다. 하지만 플라즈마 처리에 의해 인듐 알갱이들은 석순처럼 뾰족한 모양에서 둥글게 바뀌게 되고 그 크기도 작아지게 된다. 따라서 SF₆ 플라즈마 처리된 ITO의 표면 거칠기는 1.87 nm로 플라즈마 처리되지 않은 ITO의 표면 거칠기 2.49 nm와 비교해서 평탄한 값을 보여주고 있다.

그림 6은 ITO 표면의 플라즈마 처리에 따른 ITO/Al 반사막의 반사율 특성을 나타내고 있다. 최적 조건의 표면 플라즈마 처리 시 플라즈마 처리되지 않은 경우보다 높은 반사율 특성을 보이고 있다. 365 nm 파장에서의 반사율은 SF₆ 플라즈마 처리한 ITO/Al 반사막의 경우 플라즈마 처리하지 않은 경우보다 58%에서 70%로 10% 이상 증가함을 알 수 있었다. 이것은 ITO 표면의 거칠기 감소가 반사율에 중요한 역할을 하고 있는 것을 보여주고 있다. 즉 SF₆ 플라즈마 처리된 ITO/Al 반사전극의 가장 높은 광학적 반사율을 보이는 이유는 SF₆ 플라즈마 처리로 부터 ITO와 Al 사이에서 평탄화된 계면을 얻을 수 있음에서 확인할 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 고효율의 수직형 자외선 LED 소자 구현을 위해, 활성층으로의 균일한 전류주입과 광 추

출효율 향상을 가능케 하는 ITO/Al 기반의 저저항성, 고반사 전극의 특성 최적화에 관한 연구를 수행하였다. TCO 물질인 ITO를 반사막 전면에서 중간층으로 삽입하였으며, ITO의 일함수가 p형 AlGaIn에 비해 낮은 문제점을 해결하기 위해 전기음성도가 큰 fluoride 계열의 SF₆ 가스로 플라즈마 처리를 하여 fluorine을 도핑함으로써 ITO의 일함수를 증가시켜 전기적 특성을 향상시켰다. 또한, ITO/Al 사이의 계면에서의 표면 거칠기를 감소시켜 광학적 반사 특성 역시 향상된 결과를 얻을 수 있었다. 650°C 열처리 후 50 sccm의 가스 유량에서 10분 간 플라즈마 처리를 수행한 결과 향상된 I-V 특성과 접촉 저항이 $1.04 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}^2$ 에서 $9.12 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}^2$ 으로 감소된 결과를 얻을 수 있었고, 365 nm 대역에서 58%에서 70%로 10% 이상 향상된 반사율을 확인하였다.

감사의 글

이 논문은 2011년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (No. 2011-0028769).

REFERENCES

- [1] H. Rodríguez, N. Lobo, S. Einfeldt, A. Knauer, M. Weyers, and M. Kneissl, *Phys. Status Solidi.*, A207, 11 (2010).
- [2] H. S. Kim, S. J. Park, and H. S. Hwang, *Appl. Phys. Lett.*, 81, 7 (2002).
- [3] M. S. Shur and R. Gaska, *IEEE Trans. Electron Dev.*, 57, 1 (2010).
- [4] T. Fujii, A. David, Y. Gao, M. Iza, S. P. DenBaars, E. L. Hu, C. Weisbuch, and S. Nakamura, *Phys. Status Solidi.*, C2, 7 (2005).
- [5] D. H. Kim, C. O. Cho, Y. G. Roh, H. S. Jeon, and Y. S. Park, *Appl. Phys. Lett.*, 87, 203508 (2005).
- [6] C. F. Chu, C. C. Cheng, W. H. Liu, J. Y. Chu, F. H. Fan, H. C. Cheng, T. Dong, and D. A. Tran, *Proceedings of the IEEE*, 98, 7 (2010).
- [7] C. G. Granqvist and A. Hultåker, *Thin Solid Films*, 411, 1 (2002).
- [8] W. H. Lee, D. H. Kim, D. J. Chae, J. W. Yang, J. I. Sim, Y. M. Sung, and T. G. Kim, *Electrochem. Solid State Lett.*, 13, 4 (2010).
- [9] W. F. Wu and B. S. Chiou, *Appl. Surf. Sci.*, 68, 497 (1993).