

III족 질화물 반도체의 실온 광여기 유도방출

논문
8-3-4

Stimulated Emission from Optically Pumped Column-III Nitride Semiconductors at Room Temperature.

김 선 태, 문 동 찬
(Seon-Tai Kim and Dong-Chan Moon)

Abstract

We report the properties of optically pumped stimulated emission at room temperature (RT) from column-III nitride semiconductors of GaN, AlGaIn/GaN double heterostructure (DH) and AlGaIn/GaInN DH which prepared on a sapphire substrate using an AlN buffer-layer by the metalorganic vapor phase epitaxy (MOVPE) method. The peak wavelength of the stimulated emission at RT from AlGaIn/GaN DH is 369nm and the threshold of excitation pumping power density (P_{th}) is about 84kW/cm², and they from AlGaIn/GaInN DH are 402nm and 130kW/cm² at the pumping power density of 200kW/cm², respectively. The P_{th} of AlGaIn/GaN and AlGaIn/GaInN DHs are lower than the single layers of GaN and GaInN due to optical confinement within the active layers of GaN and GaInN, respectively.

Key Words(중요용어): Column-III nitride semiconductors (III족 질화물반도체), GaN (질화 갈륨), AlGaIn/GaN DH (AlGaIn/GaN 이중 이종접합구조), AlGaIn/GaInN DH (AlGaIn/GaInN 이중 이종접합구조), Stimulated emission (유도방출)

1. 서 론

최근 청색과 자외영역의 빛을 방출하는 극 단 파장 발광소자의 실현에 많은 관심이 모아지고 있다. 청색의 발광소자가 실현되면 현재 실용중인 적색과 녹색의 발광소자와 함께 전 색상의 표시가 가능하므로 full-color display와 각종 표시소자의 다양화가 기대된다. 또한 청색 반도체레이저는 현재 사용중인 각종 감광체의 파장에 대한 감도를 고려할 때 고속레이저 프린터의 광원으로 사용될 수 있고, 파장이 짧아지면 빔의 초점 반경이 상대적으로 감소하므로 고밀도 광기록 매체의 광원으로 사용 가능하며, 커다란 광자 에너지를 이용하여 각종 의용장치 및 광화학 반응에의 응용도 기대된다.

다.

청색과 자외영역에서 동작하는 극 단파장 발광소자를 제작하기 위한 반도체 재료는 에너지 갭이 2.7eV 이상이어야 하고, 높은 변화효율을 얻기 위해서는 직접천이형의 에너지 대 구조를 갖아야 한다. 이러한 조건을 만족하는 재료로서는 III족 질화물 반도체인 GaN와 II-VI족 화합물 반도체인 ZnSe 및 이들을 중심으로 한 3원 또는 4원 혼정계가 있다.¹⁾

질화보론(BN)을 제외한 III족 질화물 반도체 AlN, GaN, InN 및 이들의 3원 혹은 4원혼정 반도체 AlGaInN는 결정구조가 육방정 (wurtzite)일 때 전 조성영역에서 직접천이형 에너지 대 구조를 갖는다. 또한 III족 질화물 반도체는 견고하고, 열적·화학적으로 안정하므로 화학약품에 대하여 용이하게 에칭되지 않는 특징이 있다.²⁾ 이와 같은 것은 소자의 제작공정상 상당히 불리하지만, 소자 동작의 안정성과 고온 안정성 및 내환경특성 등의 점에서 매우 유리하다고 여겨지므로 앞서 언급한 단파장

* 대전산업대학교 재료공학과
** 광운대학교 전자재료공학과
접수일자 : 1994년 12월 6일
심사완료 : 1995년 3월 10일

영역에서 동작하는 발광소자로서의 응용이 기대된다. GaN계 반도체 레이저다이오드의 활성층으로 실온에서의 에너지 갭이 3.4eV인 GaN와 에너지 갭이 1.9eV인 InN의 3원혼정인 GaInN를 이용하면 그 발진파장은 실온에서 370nm부터 650nm까지가 되어, 가시 영역으로부터 근 자외 영역을 포함할 수 있게 된다.²⁾

또한 결정성장 기술의 진보에 따라 결정표면의 평활성이 향상되므로서 급격한 계면을 갖는 AlGaIn/GaN와 AlGaIn/GaN DH 구조의 제작이 가능하게 되었으며, 이들 구조로부터 실온에서의 고밀도 광여기에 의한 유도방출 (stimulated emission)이 보고되었다.^{3,6)} 이와 같은 DH로부터 전류주입에 의한 레이저발진은 아직 실현되지 않고 있지만, 고밀도 광여기에 의한 실온에서의 자외 유도방출이 관찰되므로서 이를 이용한 청색 혹은 자외 반도체 레이저다이오드의 실현 가능성은 가시화 되고 있다.

이 연구에서는 청색과 자외영역에서 동작하는 극 단파장 발광소자의 실현을 위하여 유기금속기상에 피택시법(MOVPE)으로 성장된 III족 질화물 반도체의 실온 고밀도 광여기에 의한 단면 유도방출특성을 조사하였다.

2. 실험 방법

III족 질화물 반도체 GaN, GaInN 및 AlGaIn를 성장하기 위하여 수평형 MOVPE장치를 사용하였다. 질화물반도체의 성장에는 유기금속가스와 V족 원소사이의 기생반응을 억제하기 위하여 이중 flow channel 반응관을 채택하였다. Trimethylaluminum (TMAl), trimethylgallium(TMGa), trimethylindium(TMIn) 와 암모니아를 각각 III족과 V족의 원료가스로 사용하였고, 수소를 운송가스로 사용하였다. 연마된 A면 혹은 C면의 사파이어를 기판으로 사용하였다. III족 질화물 반도체의 성장에 앞서 사파이어기판과 III족 질화물 반도체사이의 커다란 격자부정합을 완화시킬 목적으로 TMAl과 암모니아를 수소가스로 희석하여 반응관에 흘리면서 600°C의 온도에서 약 50nm 두께의 AlN 완충층 (buffer layer)을 성장하였다.

실험에 사용된 GaN 단독층은 약 3μm 두께의 GaN 중간층 위에 1μm정도의 두께로 성장하였으며, AlGaIn/GaN DH와 AlGaIn/GaN DH는 각각 성장과정 중에 TMAl, TMGa 및 TMIn의 유량을 변조하여 약 3μm 두께의 GaN 중간층 위에 성장

하였다. AlGaIn 크래드층의 두께는 0.34μm이었고, 활성층인 GaN와 GaInN의 두께는 각각 0.1μm와 0.2μm이었다. AlGaIn/GaN DH와 AlGaIn/GaN DH의 AlGaIn 혼정과 GaInN 혼정의 조성비는 이중결정 X선회절법으로 측정하였다. 실험에 사용된 DH는 Al_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN/Al_{0.1}Ga_{0.9}N와 Al_{0.17}Ga_{0.83}N/Ga_{0.1}In_{0.9}N/Al_{0.17}Ga_{0.83}N의 구조이었다.

광여기에 의한 실험은 발진파장 337.1 nm 이고, 펄스폭이 8nm, 펄스간격이 10Hz인 펄스발진 질소레이저를 여기광원으로 사용하였다. 그림 1은 실험에 사용된 측정방법을 개략적으로 나타낸 것이다. 레이저 빔의 최대 출력밀도는 neutral density filter로 보정하여 약 200kW/cm²이 되도록 하였고, 석영렌즈를 이용하여 시료의 표면에 0.5x0.6mm²의 크기로 초점을 맞추었다. 시료의 단면으로부터 발광되는 빛을 석영렌즈로 집광하여 길이 1m의 단색광분광기로 분광한 후 액체질소에 의하여 냉각된 CCD검출기로 검출하였다.

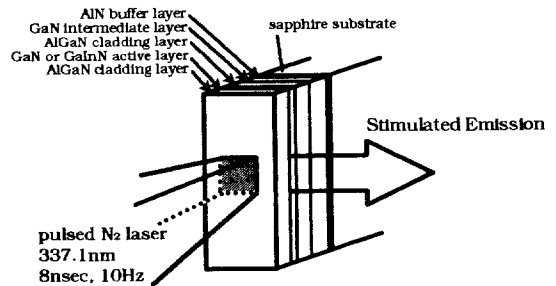


그림 1. 고밀도 광여기법으로 III족 질화물 반도체의 유도방출특성을 측정하기 위한 방법의 개략도.

Fig. 1. Schematic diagram for the measurement of stimulated emission from column-III nitride semiconductors by the high-density optical pumping method.

3. 실험결과 및 고찰

그림 2 a)와 b)는 실온에서 여기광원의 입사광밀도의 변화에 따른 GaN 단독층과 AlGaIn/GaN DH구조의 단면으로부터의 발광스펙트럼을 각각 나타낸 것이다. 측정에 사용된 시료의 Febry-Perrot 공진기 길이는 1mm 이었다. 여기 광밀도가 증가함에 따라 스펙트럼의 반치폭 (full width at half-maximum)이 감소함과 동시에 피크의 위치가 파장이 증가하는 쪽으로 이동하였다. 최대 입사광 밀도 200kW/cm²일 때 GaN 단독층에서는 375nm

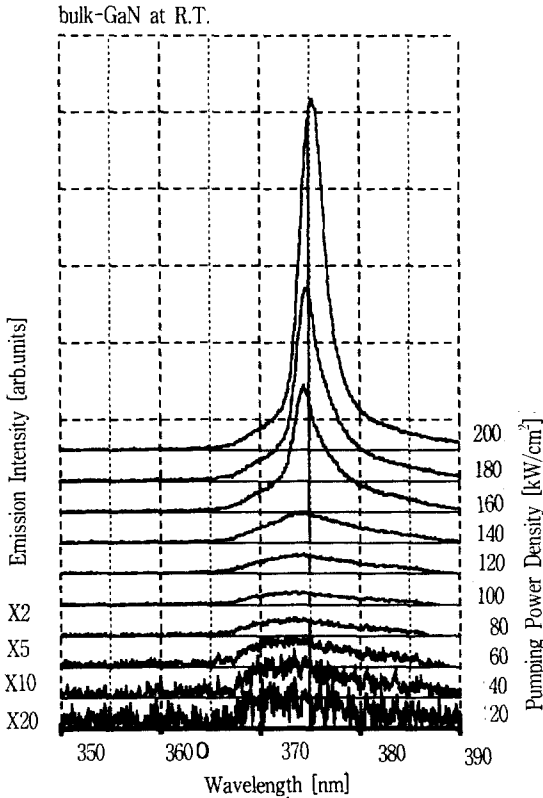


그림 2-b). 실온에서 입사 광밀도의 변화에 따른 AlGaIn/GaN DH로부터의 단면모드 방출 스펙트럼.

Fig. 2-b). Edge-mode emission spectra from AlGaIn/GaN DH with the change of optical pumping power densities at room temperature.

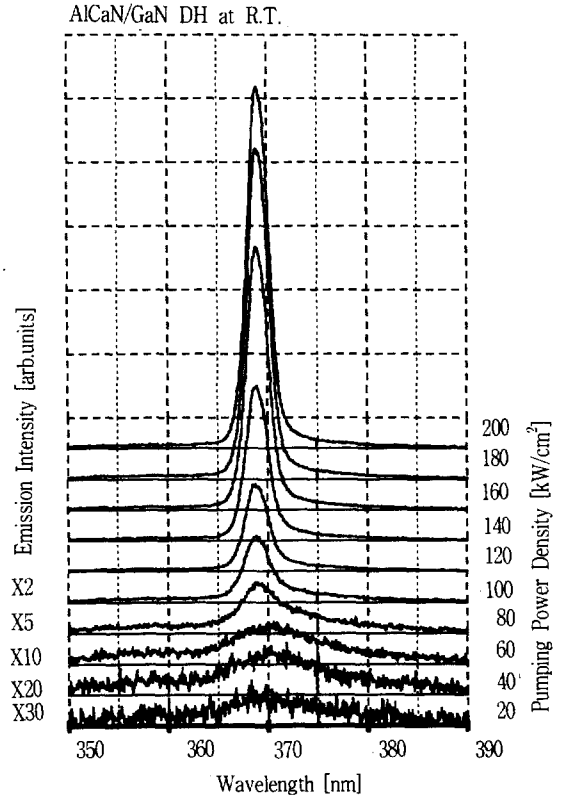


그림 2-a). 실온에서 입사 광밀도의 변화에 따른 GaN 단독층으로부터의 단면모드 방출 스펙트럼.

Fig. 2-a). Edge-mode emission spectra from GaN single-layer with the change of optical pumping power densities at room temperature.

의 파장에서 반치폭이 26.5meV인 유도방출이, AlGaIn/GaN DH의 경우는 약 360nm의 위치에서의 약한 자연발광 (spontaneous emission)과 함께 369nm 부근의 파장에서 반치폭이 22meV인 단면모드 유도방출이 뚜렷하게 나타났다.

그림 3은 GaN 단독층과 AlGaIn/GaN DH에 대한 여기광원의 입사 광밀도에 따른 광출력 사이의 관계를 나타낸 것이다. 임계치 이상에서 피크의 반치폭의 감소와 입출력 사이의 비 직선적인 관계는 유도방출의 존재를 나타내는 것이다. 그림 3으로부터 GaN 단독층의 실온 광여기 유도방출에 필요한 입사 광밀도의 임계치는 약 125kW/cm² 이었으며, AlGaIn/GaN DH의 실온 광여기 유도방출의 임계치는 약 84kW/cm²이므로 전류밀도로 환산하면 약 25kA/cm²이었다. 따라서 AlGaIn/GaN DH의 경우

에는 실온에서 전류주입에 의하여 유도방출을 실현할 수 있을 것으로 여겨진다. 이와 같이 스펙트럼의 반치폭이 감소하고, 유도방출을 위한 입사광 밀도의 임계치가 낮아지는 것은 GaN의 밴드단 부근의 파장영역에서 AlGaIn혼정의 굴절율은 GaN의 굴절율보다 작으므로⁷⁾ 광의 가둠 (confinement)이 효과적으로 일어나기 때문으로 사료된다.

그림 4는 실온에서 AlGaIn/GaInN DH의 단면모드로부터의 유도방출 스펙트럼을 나타낸 것이다. 최대 입사광 밀도 200kW/cm²에서 약 390nm 파장 부근에서의 자연방출과 함께 402nm의 파장에서 유도방출이 뚜렷하게 나타났고, 유도방출 피크의 반치폭은 18meV 이었다. GaInN를 활성층으로 사용한 경우 피크의 파장이 증가하는 쪽으로 이동한 것은 GaN-InN의 3원혼정 Ga_{1-x}In_xN에서 Ga의 몰

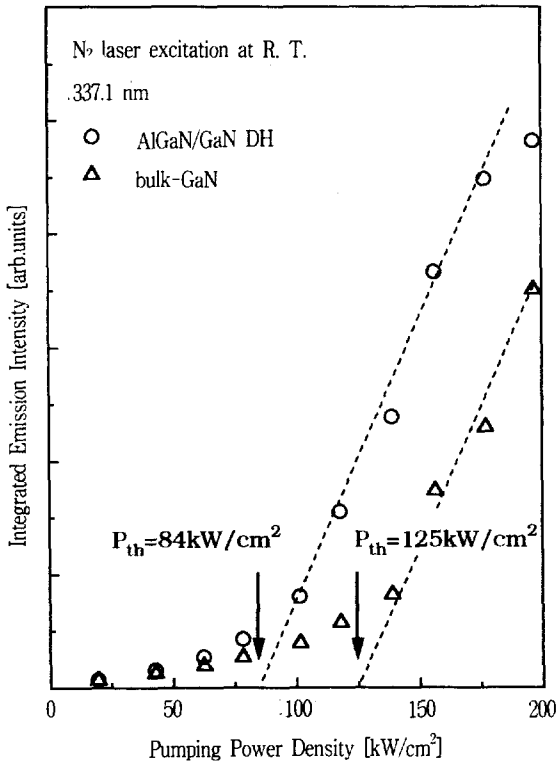


그림 3. GaN 단독층과 AlGaIn/GaN DH의 입사 광밀도와 광출력 사이의 관계.

Fig. 3. Relationships between optical pumping power density and optical output power for GaN single-layer and AlGaIn/GaN DH.

분율이 증가함에 따른 에너지 갭의 감소에 의한 것이며, 자연방출에 의한 피크의 위치는 선행 연구자들^{8,9)}의 구성에 따른 에너지 갭과 잘 일치한다. 또한 GaN를 활성층으로 사용한 DH에서의 유도방출 피크의 반치폭에 비하여 GaInN를 활성층으로 사용한 경우의 반치폭이 좁은 것을 알 수 있는데, 이는 AlGaIn/GaN DH에 비하여 AlGaIn/GaN DH의 경우가 Harrison에¹⁰⁾ 의한 강결합법으로 계산된 에너지 대 구조로부터 전도대 뿐만 아니라 가전도대의 불연속이 커짐으로서 광의 가둠은 물론 캐리어의 가둠이 보다 효과적으로 이루어졌기 때문이라 사료된다.

AlGaIn/GaN DH의 유도방출에 대광 출력 과 여기광원의 광밀도 사이의 관계를 그림 5에 나타내었으며, 유도방출에 필요한 입사광밀도의 임계치는 약 130kW/cm^2 으로서 AlGaIn/GaN DH에 대한 값 보다 다소 큼을 알 수 있다. 이와 같이 AlGaIn/

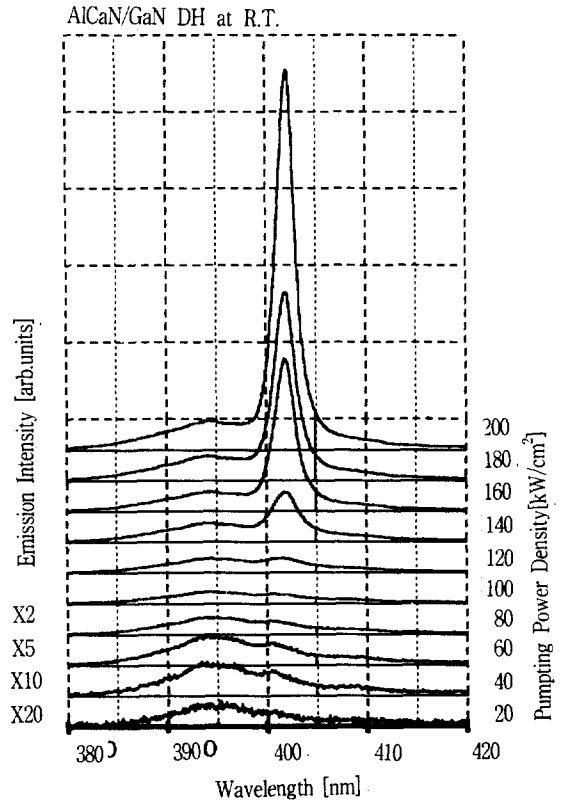


그림 4. 실온에서 입사 광밀도의 변화에 따른 AlGaIn/GaN DH로부터의 단면모드 방출 스펙트럼.

Fig. 4. Edge-mode emission spectra from AlGaIn/GaN DH with the change of optical pumping power densities at room temperature.

GaN DH에 비하여 AlGaIn/GaN DH의 임계치가 다소 크게 나타난 것은 GaInN의 결정의 품질에 문제가 있는 것으로 여겨지며, 임계치의 저하를 위해서는 보다 양질의 GaInN를 성장할 필요가 있고, 아울러 소자구조의 최적화도 연구되어야 한다. 또한 GaN 단독층과 DH구조에서의 유도방출은 에너지 갭 부근에서의 자연방출에 의한 발광피크 보다 약 90~110meV 정도 낮은 에너지측에서 일어나고 있음을 알 수 있다. 이와 같은 red-shift의 원인으로서는 여러가지가 있을 것으로 생각되며,¹¹⁾ 상세한 것은 현재 검토중에 있다.

4. 결 론

극 단파장 발광소자의 실현을 눈앞에 두고 있

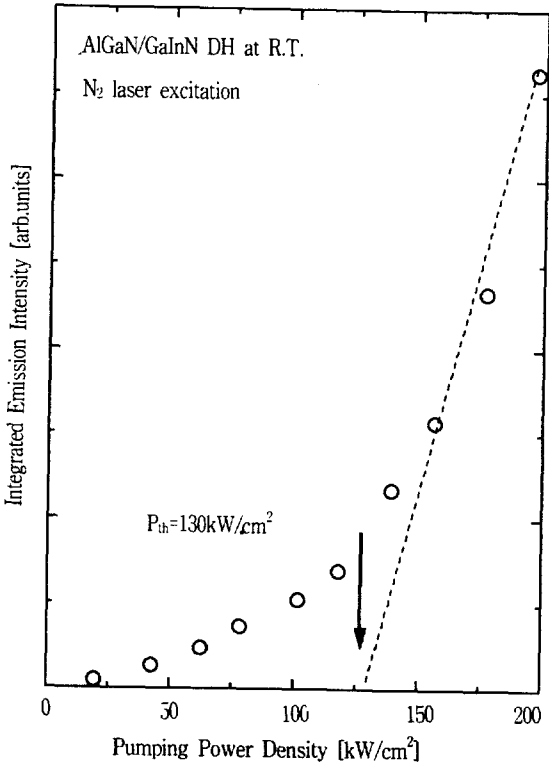


그림 5. AlGaInN DH의 입사 광밀도와 광출력 사이의 관계.

Fig. 5. Relationships between optical pumping power density and optical output power for AlGaInN DH.

는 현재, GaN계 III족 질화물 반도체를 중심으로 실온에서의 고밀도 광여기에 의한 유도방출특성을 조사하였다.

레이저의 단파장화 기술이라고 하는 관점에서 실온에서 전류주입에 의한 연속발진이 아직까지 실현되지 않고 있는 GaN계 질화물 반도체의 실온에서 고밀도 광여기에 의한 유도방출의 존재와 DH구조의 채택에 따른 광과 캐리어의 효과적인 활성층내에서의 가둠은 이를 이용한 극 단파장, 특히 청색 반도체 레이저다이오드의 개발에 커다란 가능성을 제시하는 것이다.

그러나 GaN계 III족 질화물 반도체를 이용한 극 단파장 발광소자의 실용화에 요구되는 물성제어, 소자제조공정, 소자물리 등 다루어져야 할 과제는 산적하여 있지만 가까운 장래에 가시영역의 청색은 물론 자외영역에서 동작하는 반도체레이저의 실용화에 의하여 적외, 가시, 자외에 걸쳐 임의의 파장영역에서 간섭성이 우수한 compact한 반도체

광원이 이용될 날이 멀지 않았다.

감사의 글

이 연구는 일본 메이조대학 전기전자공학과 I. Akasaki교수의 연구실에서 수행된 것임을 밝히며, 메이조대학 관계자와 I. Akasaki교수와 H. Amano 교수에게 감사드립니다.

참고 문헌

1. T. Matsuoka, A. Ohki, T. Ohno and Y. Kawaguchi, Comparison of GaN- and ZnSe-based materials for light emitters, J. Crystal Growth, vol. 138, pp. 727-736, 1994.
2. S. Strike and H. Morkoc, GaN, AlN, and InN: A review, J. Vac. Sci. Technol, vol. B 10, pp. 1237-1266, 1992.
3. H. Amano, N. Watanabe, N. Koide and I. Akasaki, Room-temperature low-threshold surface-stimulated emission by optical pumping from Al_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN double heterostructure, Jpn. J. Appl. Phys, vol. 32, pp. L1000-L1002, 1993.
4. S. T. Kim, H. Amano, I. Akasaki, and N. Koide, Optical gain of optically pumped Al_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN double heterostructure at room temperature, Appl. Phys. Lett, vol. 64, pp. 1535-1536, 1994.
5. H. Amano, T. Tanaka, Y. Kunii, K. Kato, S. T. Kim, and I. Akasaki, Room temperature violet stimulated emission from optically pumped AlGaInN/GaN double heterostructure, Appl. Phys. Lett, vol. 64, pp. 1377-1379, 1994.
6. S. T. Kim, T. Tanaka, H. Amano, and I. Akasaki, Polarization of light from an optically pumped (Al-Ga-N)/(Ga-In-N) double heterostructure, Materials Sci. and Eng, vol. B 26, pp. L5-L7, 1994.
7. M. E. Lin, B. N. Sverdlov, S. Strite, H. Morkoc and A. E. Drakin, Refractive indices of wurtzite and zinblende GaN, Electron Lett, vol. 29, pp.1759-1761, 1993.
8. S. Sakai, Y. Ueta and Y. Terauchi, Band gap and band lineup of III-V alloy semiconductors incorporating nitrogen and boron, Jpn. J. Appl. Phys, vol. 32, pp. 4413-4417,

- 1993.
9. T. Nagamoto, T. Kuboyama, H. Minamino and O. Omoto, Properties of $Ga_{1-x}In_xN$ films prepared by MOVPE, Jpn. J. Appl. Phys, vol. 28, pp. L1334-L1336, 1989.
 10. W. A. Harrison, *Electronic Structure and the Properties of Solids*, (Freeman, San Francisco, 1980), p.78.
 11. 고밀도 광여기에 의하여 GaN로부터 나타나고 있는 유도방출의 이론적 해석에는 1978년 I. M. Catalano 등 (Solid State Commun, 25, 349, 1978)에 의한 cooperative excitonic process와

1976년 J. M. Hvam과 E. Ejder의 exciton-exciton interaction process (J. Lumin, 12/13, 611, 1776) 및 1982년 R. Dai 등 (Z.Phys. B-Condensed Matter, 46, 189, 1982)과 R. Cin golani 등 (Solid State Commun, 60, 705, 1986)에 의하여 제안된 electron-hole plasma model 등이 있다.

그러나 이들의 실험과 그 기구의 해석은 결정 온도가 80K 이하에서의 취급이었고, 아직까지도 실온에서 일어나고 있는 유도방출의 원인은 규명되지 않고 있다.

저자소개

김선태



1956년 9월 11일생. 1981년 광운대 공대 전자재료공학과 졸업. 1984년 동 대학원 전자재료공학과 졸업(석사). 1988년 동 대학원 전자재료공학과 졸업(공학박사). 1995년 현재 대전산업대학 재료공학과 조교수.

문동찬



1935년 2월 25일생. 1957년 연세대 이공대 물리학과 졸업. 1965년 연세대 대학원 물리학과 졸업(석사). 1981년 연세대 대학원 물리학과 졸업(이학박사). 1982년 미국 라이트-패더슨 공군연구소 초빙과학자. 1995년 현재 광운대학교 공대

전자재료공학과 교수.