자외선 수직형 LED 제작을 위한 Indium Tin Oxide 기반 반사전극

정기창 · 이인우 · 정탁*[†] · 백종협* · 하준석

전남대학교 응용화학공학부, *한국광기술원 LED소자센터

Indium Tin Oxide Based Reflector for Vertical UV LEDs

Ki-Chang Jung, Inwoo Lee, Tak Jeong*[†], Jong Hyeob Baek* and Jun-Seok Ha

School of Applied Chemical Engineering, Chonnam University, Gwangju 500-757, Korea

*Korea Photonics Technology Institute, Gwangju 500-779, Korea

(2013년 1월 29일 접수 : 2013년 2월 2일 최종수정 : 2013년 2월 4일 채택)

Abstract In this paper, we studied a p-type reflector based on indium tin oxide (ITO) for vertical-type ultraviolet light-emitting diodes (UV LEDs). We investigated the reflectance properties with different deposition methods. An ITO layer with a thickness of 50 nm was deposited by two different methods, sputtering and e-beam evaporation. From the measurement of the optical reflection, we obtained 70 % reflectance at a wavelength of 382 nm by means of sputtering, while only 30 % reflectance resulted when using the e-beam evaporation method. Also, the light output power of a 1 mm × 1 mm vertical chip created with the sputtering method recorded a twofold increase over a chip created with e-beam evaporation method. From the measurement of the root mean square (RMS), we obtained a RMS value 1.3 nm for the ITO layer using the sputtering method, while this value was 5.6 nm for the ITO layer when using the e-beam evaporation method. These decreases in the reflectance and light output power when using the e-beam evaporation method are thought to stem from the rough surface morphology of the ITO layer, which leads to diffused reflection and the absorption of light. However, the turn-on voltage and operation voltage of the two samples showed identical results of 2.42 V and 3.5 V, respectively. Given these results, we conclude that the two ITO layers created by different deposition methods showed no differences in the electric properties of the ohmic contact and series resistance.

Key words ITO, reflectance, p-type contact, UV LEDs, Vertical LEDs.

1. 서 론

지난 수십년 동안 GaN을 기반으로 하는 III-V족 반도체는 많은 발전을 이루어 왔다. GaN은 InGaN 또는 AlGaN와 같은 형태로 다양한 파장의 광원을 구현 할 수 있는 물질이다. 최근 GaN은 light emitting diode(LED)에 가장 많이 사용되는데 그 주요 이유는 높은 광 변환 효율, 소형화, 반영구적 수명, 친환경적인 물질이기 때문이다. 특히, AlGaN를 기반으로 하는 자외선(UV)영역의 LED는 의료, 광, water purification, 신호, 센서등과 같이 다양한 영역에 적용할 수 있을 것으로 기대되기 때문에 많은 연구가 이루어 지고 있다. 하지만, AlGaN를

기반으로 하는 UV LED는 매우 낮은 효율을 갖고 있어 더 많은 연구가 필요하다. 특히, 에피층(epi-layer)의 낮은 품질과, 최적화 되지 않은 LED칩(chip)구조가 낮은 효율의 원인으로 지목되고 있다. Epi-layer는 GaN와 AlGaN의 성장조건이 달라 양질의 박막을 얻기 위하여 다양한 문제점이 존재한다. 이로 인해 생성된 결함은 내부 양자 효율을 저하 시키는 원인이 된다. 따라서, 고품질의 AlGaN epi-layer를 성장시키는 방법이 많이 연구되고 있다.¹⁻⁸⁾ 또한, LED칩 구조의 최적화를 위하여 수직형 구조에 대한 연구가 많이 진행 되고 있다. 수직형 구조는 전자와 정공이 서로 수직방향으로 이동하여 활성층에서 재결합 하기 때문에 기존 수평형 구조에 발생

[†]Corresponding author

E-Mail : tjeong@kopti.re.kr (T. Jeong, KOPTI)

© Materials Research Society of Korea, All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

하는 전류밀집현상이 감소되어, 높은 효율을 얻을 수 있는 장점이 있다. 이러한 수직형 LED의 광 추출 효율을 향상 시키기 위하여 n-GaN표면 *texturing*, 높은 반사율을 갖는 반사막 증착, 낮은 접촉 저항을 갖는 오믹 컨택층 등과 같은 다양한 방법을 이용하고 있다.⁹⁻¹¹⁾ 수직형 LED는 높은 반사율을 갖는 반사막을 포함하고 있어 광 추출 효율을 향상 시킬 수 있는데, 기존 청색 영역에서 널리 사용하는 반사막은 UV 파장 영역에서 반사율이 현저히 떨어지는 문제점을 갖고 있다. 이는 p-GaN과 반사막 사이에 존재하는 오믹 컨택층이 광 흡수를 일으키기 때문이다. 따라서, 자외선 수직형 LED의 반사율을 개선하기 위하여 광 흡수를 줄이는 오믹 컨택층에 대한 연구가 필요하다.

본 논문에서는 높은 투과율과 낮은 접촉 저항을 갖는 수직형 UV LED용 반사형 오믹 컨택층에 대한 연구를 진행하였다. 오믹층으로서의 indium-tin-oxide(ITO)를 sputtering법과 e-beam evaporation 법에 의하여 각각 증착 한 후 반사형 전극을 형성, 이들의 UV 파장 영역에서의 표면상태와 반사율 등에 대하여 알아보았다. 또한 이들 컨택층을 실제 수직형 UV LED소자제작 적용하여 LED device의 전기적, 광학적 특성에 미치는 영향을 확인해 보았다.

2. 실험 방법

Fig. 1은 본 실험에서 사용된 시편들의 개략도를 보여주고 있다. 먼저 반사율 측정실험을 위하여 금속유기화학 기상증착(MOCVD)장치를 사용하여 양면 연마(Polishing)된 c-면 사파이어 기판 위에 4 μm 두께의 GaN을 성장하였다. Buffered oxide etcher(BOE)용액을 사용하여 GaN 표면에 남아있는 native oxide를 제거한 후 일반적인 유기세척법인 아세톤, 메탄올, de-ionized(DI) water내에서 각각 5분간 초음파 세척을 실시하였다. 그 후 ITO 박막 없이 직접 반사 막을 증착 한 시편 A (Fig. 1(a))와 sputtering법에 의하여 증착 된 ITO막 위에 반사 막이 증착 된 시편 B (Fig. 1(b)), 그리고 e-beam 증착 법에 의하여 증착 된 ITO막 위에 반사 막이 증착 된 시편 C

(Fig. 1(c))를 제작하였다. 이 때, ITO두께는 일반적으로 LED의 p-type ohmic contact에 사용되는 두께인 50 nm를 사용하였으며, 반사 막으로는 Ag의 계면에너지 제어를 통한 뭉침 현상(agglomeration)을 억제하고 접착력을 증가시키는 것으로 알려진 AgCu합금을 사용하여 250 nm 두께로 증착 하였다. 증착 후 ITO와 반사 막 사이의 접촉저항을 줄이기 위하여 LED 제작공정에서 일반적으로 사용되는 rapid thermal process(RTP)장치로 1분 동안 500 $^{\circ}\text{C}$ 온도의 질소분위기에서 열처리를 실시하였다. UV/VIS/NIR spectroscopy를 이용하여 각각의 박막의 반사율 측정을 진행하였으며, 이와 함께 시편의 표면 거칠기를 atomic force microscopy(AFM)로 측정하였다.

이들 반사막들이 device에서 어떤 영향을 끼치는지 알아보기 위하여 실제 수직형 UV-LED에 적용해 보았다. UV-LED Epi는 MOCVD장치에 의하여 380 nm 파장 영역대로 성장되었다. 수직형 LED 제작은 현재 널리 사용되고 있는 laser lift-off(LLO)방법을 사용하여 진행하였다. Mo 기판을 사용한 metal support bonding법을 사용하였으며, 이를 위하여 e-beam으로 증착된 Ti(100 nm)/Ni(100 nm)/AuSn(300 nm)의 bonding metal을 사용하여 고온 고압 조건에서 wafer bonding 공정을 진행하였다. 본 연구에서 변수로 하고 있는 p-contact 반사막과 더불어 n-contact 물질로는 300 nm, 500 nm의 두께를 갖는 Cr/Au system을 사용 하였다. 그 외의 유도 결합 플라즈마(inductively-coupled plasma) etching, passivation 공정 등은 일반적인 수직형 LED 제작법에 준하여 사용하였다. 제작된 LED chip 크기는 1 mm $\times$ 1 mm 었다. 이렇게 제작된 LED device의 전기적 광학적 특성을 I-V meter와 적분구(LMS-2000)를 통하여 알아보았다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 Fig. 1에서와 같이 제작된 시편의 반사율 측정 데이터이다. 측정 파장 범위는 200 nm에서 800 nm까지 이다. GaN/ITO/반사막 구조와의 비교를 위하여 ITO interlayer 없이 곧 바로 반사막을 증착 한 시편 A에 대한 반사율 측정도 함께 진행하였다. 먼저 ITO막 없이 곧

Fig. 1. Schematic diagram for (a) sample A(direct reflector), (b) sample B(Sputter ITO/reflector) and (c) sample C(E-beam ITO/reflector).

Fig. 2. Reflectance for sample A, Sample B and Sample C measured by UV/VIS/NIR spectroscopy.

바로 증착 된 AgCu 막(시편 A)의 경우, 장파장 영역에서 95 %이상의 반사율을 보이다가 청자색 영역인 420 nm 파장 영역 내에서 감소하기 시작하여, 자외선 영역인 380 nm 파장에서 85 %의 반사효율을 나타내는 것으로 측정되었다. Sputtering 법에 의하여 ITO가 증착 된 후 반사막을 증착 된 경우(시편 B)는 장파장 영역의 반사율로부터 500 nm 청록색 파장 영역까지는 시편 A와 비슷한 반사율을 보이다가, 청색영역인 450 nm 파장에서부터 감소하기 시작하였고, 380 nm 파장 대에서 70 %의 반사율을 보였다. 이와 달리 e-beam evaporator를 사용하여 ITO 증착 후 반사 막을 형성한 경우(시편 C), 최초 800 nm 영역에서만 다른 시편들과 비슷한 반사율을 갖지만, 파장이 감소함에 따라 급격한 감소현상을 보여주고 있으

Fig. 4. RMS roughness values for each sample in Fig. 3.

며, UV 파장인 380 nm에서는 30 %의 낮은 반사율을 보이는 것을 알 수 있다. GaN과 반사막 사이에 중간층이 없는 경우가 반사율 면에서는 가장 좋은 것은 확실해 보인다. 그러나 실제 LED device에서는 동작 전압의 증가를 막기 위하여 p-type GaN와의 ohmic contact의 형성이 중요하며, ITO layer가 그 역할을 하고 있는 경우가 많다. 이런 이유로 GaN층에 투명한 ITO층의 먼저 형성 후 반사막을 증착 하는 것이 일반적이다. 결과적으로 ITO층의 증착을 sputter를 이용한 경우가 e-beam evaporator를 사용한 경우보다 UV-LED를 위한 380 nm 파장에서 2 배 이상의 높은 반사율을 나타내고 있음을 알 수 있었다.

각 층의 표면 상태를 분석하기 위하여 AFM을 측정하였고 그 결과를 Fig. 3과 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 3은 각 시편의 AFM결과이다. Fig. 3(a)와 (b)는 e-beam 및

Fig. 3. AFM images for (a) ITO(e-beam)/GaN, (b) ITO(sputter)/GaN, (c) AgCu/ITO(e-beam)/GaN and (d) AgCu/ITO(sputter)/GaN.

sputter로 ITO증착, 열처리 후 표면의 AFM 결과이며, (c)와 (d)는 ITO 층 위에 AgCu 반사막을 증착 한 후 측정 한 표면 거칠기 결과이다. Fig. 4는 측정된 거칠기를 root mean square(RMS)로 나타낸 그래프이다. AFM mapping 결과와 RMS 그래프에서 알 수 있듯이, e-beam에 의하여 증착 된 ITO의 경우 5.6 nm로서 sputter로 증착 된 ITO의 1.3 nm에 비하여 약 4배 이상 거친 것을 확인할 수 있다. 이러한 표면 거칠기가 나타나는 이유로는 증착 중에 형성되는 ITO원자들 사이의 다공성 결정립 때문이다. E-beam 증착법에 의하여 성장된 ITO 막과 sputter로 증착 된 ITO cluster의 grain 크기와 모양이 서로 다르기 때문이다. 또한 표면의 형성 밀도 역시 sputter의 경우가 훨씬 균일하게 증착 되게 되어 열처리 과정에서 더 미세한 결정립계를 형성함으로써, 열처리 후에도 박막의 거칠기가 크게 변화되지 않고 유지될 수 있기 때문이다.¹²⁾ Fig. 3(c)와 (d)는 이렇게 형성된 ITO 상에 증착 된 AgCu 반사막의 표면 형상이다. 이들의 표면의 거칠기는 반사막 증착 전의 결과와 큰 차이가 없는 것을 알 수 있는데, 이는 기저면의 ITO 표면 형태를 따라 반사막이 형성됨으로써 동일한 경향을 가지는 것으로 판단된다.

이와 같이 GaN 표면에 증착 되는 표면의 거칠기 변화로 인하여 e-beam 증착에 의한 ITO/반사막의 경우 큰 표면 거칠기 및 결정립계로 인한 난반사 및 빛의 흡수¹³⁾에 의하여 반사율이 크게 저하되는 것으로 판단된다.

Fig. 5는 위의 두 가지 방법에 의하여 증착한 ITO/반사막 전극을 이용하여 실제 제작한 LED device의 I-V 그래프 이다. 일반적으로 ohmic contact이 형성되지 않을 경우 I-V 특성에서 turn on voltage가 3 V 이상으로 높게 나타나는 데, 본 연구에서 제작된 두 종류의 시편 모두에서 turn on voltage가 2.42 V로서 device 제작은 문제

Fig. 5. Current-Voltage(I-V) plots for each LED devices with sputter ITO layer and e-beam ITO layer, Optical spectrum with increase of current injection(inset).

Fig. 6. Optical output power-current(L-I) plots for each LED devices with sputter ITO layer and e-beam ITO layer and pictures of optical microscope.

없이 가능한 것으로 판단된다. 즉, 표면 거칠기가 컸던 e-beam ITO와 균일한 RMS 값을 보여 주었던 sputter ITO 박막 모두 전기적 특성에는 영향이 없는 것으로 보인다. 350 mA에서의 동작전압 또한 양 시편 모두 3.5 V로 측정되어 큰 차이를 보이지 않았다. Fig. 5의 inset에는 발생한 빛의 파장과 주입 전류에 따른 파장변화를 나타내고 있다. Peak 파장은 382 nm로서 UV 영역의 발광임을 알 수 있었다. 전류 주입량의 변화에 따른 Blue shift나 Red Shift는 발생하지 않았다.

Fig. 6은 두 가지 방법으로 증착한 ITO와 반사막을 적용하여 동일한 공정으로 제작한 수직형 LED소자의 광 출력 결과를 나타내었다. 구동전류 350 mA에서의 광 출력값이 sputter ITO박막을 갖는 LED소자는 100 mW인 반면 e-beam ITO박막에 의한 소자는 50 mW로서 sputter ITO박막의 경우가 약 2배의 높은 광 출력 값을 얻는 것을 확인할 수 있다. 이 결과는 앞에서 설명한 바와 같이 sputtering법에 의한 ITO/반사막 형성법이 e-beam의 경우보다 적은 광 흡수를 일으키며, Fig. 2에서 보여 준 것 과 같이 약 2배 이상 높은 반사율을 갖기 때문에 광 출력력이 2배 정도 상승한 결과를 가져오는 것으로 판단된다. Fig. 6의 내부의 광학현미경 사진으로부터 두 시편의 광 출력 차이를 육안으로 쉽게 확인 할 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 AlGaIn를 기반으로 하는 수직형 UV LED 제작을 위하여, 높은 반사율을 갖는 p-type ohmic contact 반사막 개발에 관한 연구를 진행하였다. Sputtering 법과 e-beam evaporation 법에 의한 ITO 박막의 형성과 반사막 증착을 통하여 증착 방법에 따른 반사율

및 제작된 소자로부터의 전기적 광학적 특성을 살펴보았다. Sputtering 법에 의하여 형성된 ITO/반사막의 경우가 e-beam evaporation을 통한 ITO/반사막의 경우보다 382 nm UV 파장 영역 내에서 2배 이상 높은 반사율을 나타내었다. 이들을 사용하여 제작된 광 소자의 광 출력 또한 350 mA 인가전류에서 각각 100 mW, 50 mW를 나타냄으로써 반사율의 차이가 직접적으로 광 출력의 차이를 나타낸다는 것을 확인할 수 있었다. 이와는 달리, 두 방법 모두 비슷한 turn-on voltage와 동작전압을 나타내는 것으로 보아, 두 방법으로 형성된 ITO 박막의 ohmic contact 및 전기적 특성에는 큰 영향을 미치지 않은 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 교육과학기술부와 한국연구재단의 지역혁신인력양성사업으로 수행된 연구결과임.

참 고 문 헌

1. D. J. Chea, D. Y. Kim, D. H. Kim, S. J. Kim and T. G. Kim, J. Kor. Phys. Soc., **58**, 990 (2011).
2. M.-F. Huang and T. -H. Lu, IEEE J. Quant. Electron, **42**, 820 (2006).
3. A. A. Allerman, M. H. Crawford, A. J. Fischer, K. H. A. Bogart, S. R. Lee, D. M. Follstaedt, P. P. Provencio and D. D. Koleske, J. Cryst. Growth, **272**, 227 (2004).
4. T. Wanga, Y. H. Liu, Y. B. Lee, Y. Izumi, J. P. Ao, J. Bai, H. D. Li and S. Sakai, J. Cryst. Growth, **235**, 177 (2002).
5. E. Feltin, J. -F. Carlin, J. Dorsaz, G. Christmann, R. Butte, M. Laugt, M. Ilegems and N. Grandjean, Appl. Phys. Lett., **88**, 051108 (2006).
6. T. Mukai, D. Morita and S. Nakamura, J. Cryst. Growth, **189**, 778 (1998).
7. J. Han, J. J. Figiel, M. H. Crawford, M. A. Banas, M. E. Bartram, R. M. Biefeld, Y. K. Song and A. V. Nurmikko, J. Cryst. Growth, **195**, 291 (1998).
8. H. Hirayama, S. Fujikawa, N. Noguch, J. Norimatsu, T. Takano, K. Tsubaki and N. Kamata, Phys. Status Solidi A, **206**, 1176 (2009).
9. S. -K. Kim, J. W. Lee, H. -S. Ee, Y. -T. Moon, S. -H. Kwon, H. Kwon and H. -G. Park, Opt. Express, **18**, 11025 (2004).
10. C. H. Kuo, S. J. Chang, Y. K. Su, R. W. Chuang, C. S. Chang, L. W. Wu, W. C. Lai, J. F. Chen, J. K. Sheu, H. M. Lo and J. M. Tsai, Mater. Sci. Eng. B, **106**, 69 (2004).
11. R. France, T. Xu, P. Chen, R. Chandrasekaran and T. D. Moustakas, Appl. Phys. Lett., **90**, 062115 (2007).
12. S. -C. Hsu, D. -S. W., X. Zheng and R. -H. Horng, J. Electrochem. Soc., **156**, H281 (2009).
13. S. Jang, B. S. Kang, F. Ren, N. W. Emanetoglu, H. Shen, W. H. Chang, B. P. Gila, M. Hlad and S. J. Pearton, J. Electrochem. Soc., **154**, H336 (2007).