

InAs 양자점의 크기에 따른 분광학적 특성

권영수* · 임재영 · 이철로 · 노삼규 · 유연희* · 최정우* · 김성만** ·
이욱현*** · 류동현*** · 이동한*** · 박장환****

한국표준과학연구원 물질량 표준부, *경희대학교 물리학과, **경북대학교 전자공학과,
충남대학교 물리학과, *한경대학교 전자공학과
(1999년 6월 26일 접수)

Optical properties of InAs quantum dots with different size

Y. S. Kwon,* J. Y. Leem, C. R. Lee, S. K. Noh, Y. H. Ryu,* J. W. Choe,* S. M. Kim,**
U. H. Lee,*** D. H. Ryu,*** D. H. Lee,*** and Jang-Hwan Park****

Material Evaluation Center, Korea Research Institute of Standards and Science,
*Dept. of Physics, Kyunghee Univ., **Dept. of Electronics, Kyungpook Nat. Univ.,
Dept. of Physics, Chungnam Univ., *Dept. of Electronics, HanKyung Nat. Univ.
(Received June 26, 1999)

요 약 - MBE(Molecular Beam Epitaxy) 방법으로 InAs 양자점의 크기를 달리하여 성장한 InAs 양자점의 구조적 특성과 분광학적 특성을 조사하였다. 구조적 특성은 AFM(Atomic Force Microscopy)으로 하였으며, 광학적 특성은 PL(Photoluminescence)로 수행하였다. AFM 측정결과 양자점의 밀도는 2 ML에서 최대 값인 $1.1 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ 이다. 양자점의 크기가 증가함에 따라 PL 피크는 적색편이를 하고 있었다. 발광피크의 온도의존성을 조사한 결과 온도의 증가에 따라 발광피크는 낮은 에너지로 이동하였으며, 20 K에서 180 K 구간에서는 발광 피크의 FWHM(Full Width at Half Maximum) 값은 감소하였으며, 180 K 이상의 온도에서는 온도의 증가에 따라 FWHM도 증가하였다. 한편 Arrhenius-type function으로 구한 활성화 에너지는 InAs 양자점의 크기가 증가함에 따라 증가하였다.

Abstract - We present Photoluminescence (PL) and Atomic Force Microscopy (AFM) image on InAs quantum dots (QDs) having different size which grown by Molecular Beam Epitaxy (MBE). For different size QDs, analysis of the AFM profiles show that the density of QDs was the maximum value ($1.1 \times 10^{11}/\text{cm}^2$) at 2.0 ML. In the PL spectra of QDs, it is found that the peak energy decreases with increasing dot size due to the effect of quantum confinement. Temperature dependence of PL intensities show that the PL is quenching and Red shift as the temperature increase. The FWHM range of 20 K~180 K is narrowing with increasing temperature. When temperature is over 180 K, the line-width starts to increase with increasing temperature. At last, temperature dependence of the integrated intensities were fit using the Arrhenius-type function for the activation energy. Fit value of the activation energy was increased with increasing QDs-size.

1. 서 론

광 통신용 반도체 레이저 및 단전자 트랜지스터의 개발 가능성으로 인하여(In, Ga)As 계열 III-V족 양자점에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 그러나 양자점 형성 기술이 아직까지 확립되지 않아 실용화에는 이르지 못하고 있다. 양자점을 형성하는 방법으로는 집속 이온빔과 반응성 에칭에 의해 Frank-van der Merve 모드로 성

장한 에피층을 가공하거나 또는 요철 형태로 가공한 기판 위에 에피층을 성장하여 인공적으로 만드는 방법과 박막 성장 중에 기판과 에피층 사이의 격자부정합에 의한 strain 에너지에 의해 자연적으로 형성되는 양자점(self-assembled quantum dots, SAQDs)으로 나눌 수 있다. 인공적인 조작에 의해 형성된 양자점은 표면이 기계적인 손상을 입어 캐리어 포획준위가 형성되고, 이로 인하여 비발광 중심이 발생하므로 광학적 특성이 나빠진

다는 단점을 가지고 있다. 따라서 광소자로의 응용 가능성이 매우 희박하다. 그러나 Stranski-Krastanov 모드로 박막 성장 중에 자연적으로 형성된 SAQD는 전혀 손상이 없는 결정구조를 유지하기 때문에 광학적 특성이 매우 좋다는 장점을 가지고 있다 [1-3].

SAQD중 가장 많이 연구되고 있는 것이 GaAs 기판 위에 InAs 양자점의 형성이다. GaAs 기판 위에 InAs를 성장하는 경우에는 두 물질 사이의 격자상수(GaAs: 5.653 Å, InAs: 6.058 Å)의 차이가 7% 정도 나기 때문에 Stranski-Krastanov 모드로 성장하게 된다. 따라서 InAs의 성장 초기에는 2 monolayer 이내에서 단층성장을 하다 그 이상의 두께가 되면 strain 에너지에 의해 3차원적인 성장을 하게 된다 [4]. 이 3차원적인 성장에 의해 형성된 InAs를 양자점이라고 부르고 있으며, 이것은 3차원으로 양자효과를 나타내게 된다. 이러한 3차원적인 InAs 양자점을 이용하여 반도체 레이저의 실온연속발진이 보고되고 있을 뿐만 아니라 상온에서 동작하는 적외선 검출기까지 보고되고 있는 실정이다 [1, 5]. 하지만 그 특성은 이론적으로 예측한 것과는 많이 다른 양상을 보이고 있다. 이것의 주된 원인으로는 양자점 크기 및 조성의 균일화, 그리고 밀도의 최적화가 아직까지 이루어지고 있지 못하기 때문이다. 따라서 정밀하게 양자점을 제어하는 기술이 매우 중요하다.

이에 본 연구에서는 InAs 양자점의 크기에 따른 구조적 특성과 분광학적 특성을 연구하였다. InAs 양자점은 GaAs 기판 위에 MBE(Molecular Beam Epitaxy) 방법으로 성장하였다. InAs 성장 중 성장 특성은 RHEED (Reflection High-energy Electron Diffraction)로 관측하였으며, 성장된 시료의 구조적 특성은 AFM(Atomic Force Microscopy)으로 조사하였다. 한편 InAs 양자점의 크기에 따른 분광학적 특성은 PL (Photoluminescence)로 조사하였다.

2. 실험방법

InAs 양자점 성장은 분자선 에피택시 방법으로 하였다. InAs 양자점을 성장하기 위하여 사용한 기판은 GaAs(100)이었다. 성장챔버에서 As빔을 조사시켜 주면서 기판온도를 올려서 540°C에서 탈산화를 10분 동안 한후 기판온도를 560°C로 올려 buffer층을 성장하였다. buffer층을 5000 Å 성장한 후 기판온도를 460°C로 내려 InAs 양자점을 성장하였다. 에피층 성장 중 As 분자선

의 BEP (beam equivalent pressure)는 8.0×10^{-6} Torr로 유지 하였으며, GaAs의 성장률은 2.514 \AA/s (=0.889 ML/s), InAs의 성장률은 0.255 \AA/s (=0.084 ML/s)로 하였다. InAs 양자점은 양자점의 크기를 1.8, 2, 2.5, 3 ML로 달리하여 4 종류를 성장하였다. 구조적 특성 평가를 위한 시료는 양자점을 성장시킨 후 성장을 종료하였으나 분광학적 특성 조사를 위한 시료는 InAs 양자점을 성장한 후 그 위에 cap 층으로 GaAs를 500 Å 성장하였다. 4종류의 양자점 성장구조에서 InAs 양자점의 크기를 달리 한 것 이외에는 모든 성장조건 및 구조가 동일하게 하였다. 양자점 성장 전후에는 30초 동안 성장을 중지하여 급준한 양자점 계면이 형성되게 하였다. 양자점의 형성은 성장 중에 RHEED로 확인 할 수 있었으며, 성장된 시료의 특성은 AFM과 PL을 이용하여 측정하였다. PL은 Ar+ 514.5 nm 레이저와 Ge 검출기를 사용하였으며, 분해능은 0.8 nm로 하였고, 단위 면적당 파워는 대략 31.25 W/cm^2 로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 구조적 특성

양자점 형성은 RHEED로 확인하였다. GaAs buffer층 성장 후 RHEED에 의한 표면구조는 2×4 As-rich 구조를 가지고 있었다. 그 표면 위에 InAs를 성장하기 시작하면 2×4 의 표면 구조는 희미해지기 시작하여 약 1.8 ML (monolayer) 정도의 InAs 층이 형성되면 $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ 방향으로 화살머리 모형 (arrow-head like pattern)이 보이기 시작하고 $\langle 110 \rangle$ 방향에서는 반점모형 (spotty pattern)이 나타나기 시작한다. 따라서 본 연구에서는 1.8 ML까지는 InAs 박막이 단층성장을 하다가 변형에너지 (strain energy)가 커짐에 의해 그 이후부터는 3차원적인 핵 성장을 하고 있음을 알 수 있다. 이것은 Stranski-Krastanov 모드로 일반적으로 GaAs 기판 위에 InAs를 성장할 때 나타나는 성장모드이다.

InAs 양자점의 크기를 달리하여 성장한 시료의 3차원적인 AFM의 측정결과가 그림 1이다. AFM 측정 결과를 종합한 것이 표 1이다.

형성된 양자점은 크기에 따라 세 종류로 분리할 수 있으며, InAs의 적층량이 증가함에 따라 그 크기는 증가하였다. InAs 적층량이 증가함에 따라 양자점은 $[1\bar{1}0]$ 나 $[\bar{1}10]$ 방향으로 우선적으로 성장을 한 후 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 혹은 $[110]$ 방향으로 성장하는 모습으로 그 형태를 성장시키

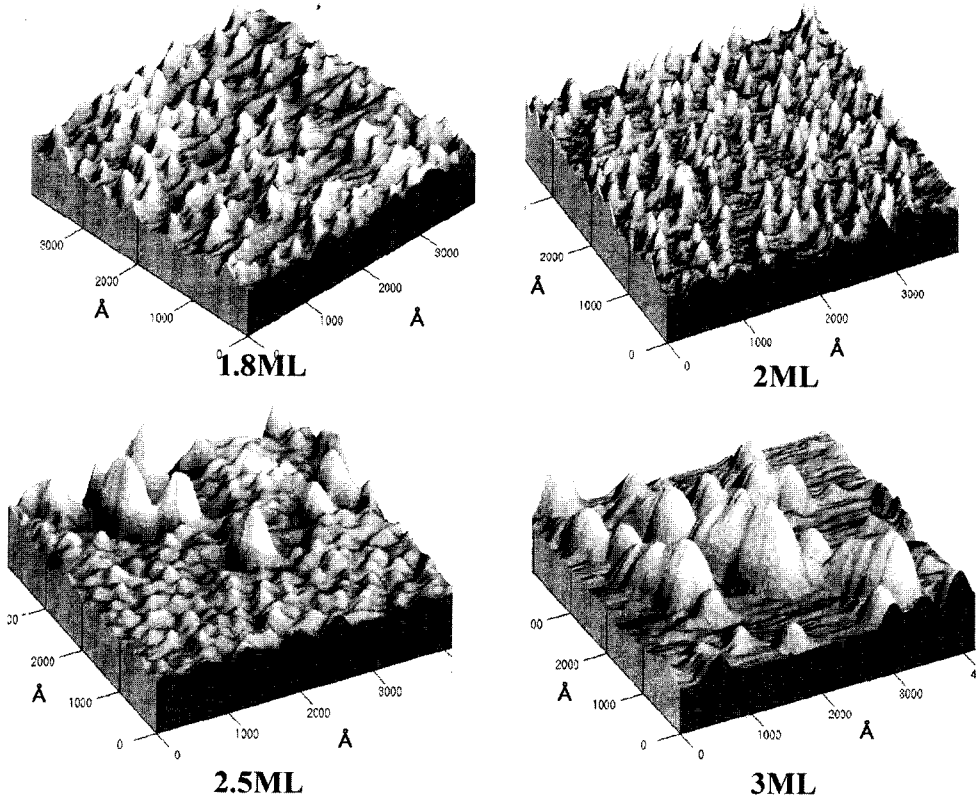


그림 1. 크기를 달리하여 성장한 InAs 양자점의 3차원 AFM.

는 양상을 보이며, 단일 양자점은 대략 15~20 Å 정도가 임계높이로 보이는데, 단일 양자점을 유지하며 성장

을 지속하다가 임계높이 근처에서 주위의 다른 양자점과 결합하거나 그 형태가 무너진 후 이것을 기반으로 하

표 1. AFM 측정으로부터 구한 InAs 양자점의 크기 변화.

항목 크기	높이	짧은축 길이	긴축 길이	Percent	
1.8ML	Small	8.7±1.2 Å	144±10 Å	242±21 Å	≐ 0.05%
	Medium	14.1±1 Å	190±6 Å	292±31 Å	≐ 99.9 %
	Large	20.5±3 Å	188±15 Å	346±35 Å	≐ 0.05%
2.0ML	Small	4.5±2 Å	218.8±41.2 Å	309.7±15.3 Å	≐ 99.06%
	Large	72.4±18.2 Å	572.8±37.8 Å	741.5±49.5 Å	≐ 0.94%
2.5ML	Small	15.1±3.2 Å	212.25±28.25 Å	312±31 Å	≐ 95.04%
	Medium	70.8±20.5 Å	504.3±43.75 Å	716±58 Å	≐ 3.64%
	Large	112.6±36.8 Å	830.3±57.3 Å	1052.3±62.3 Å	≐ 1.32%
3.0ML	Small	11.1±3 Å	220.2±39 Å	303.2±29.2 Å	≐ 58.09%
	Medium	44.4±8.9 Å	456±43 Å	540.7±16.7 Å	≐ 22.06%
	Large	78.3±31.6 Å	590.3±55.3 Å	763±127.2 Å	≐ 13.24%
	Larger	203.5±45.5 Å	1430.3±467.8 Å	2026.7±675.6 Å	≐ 6.62%

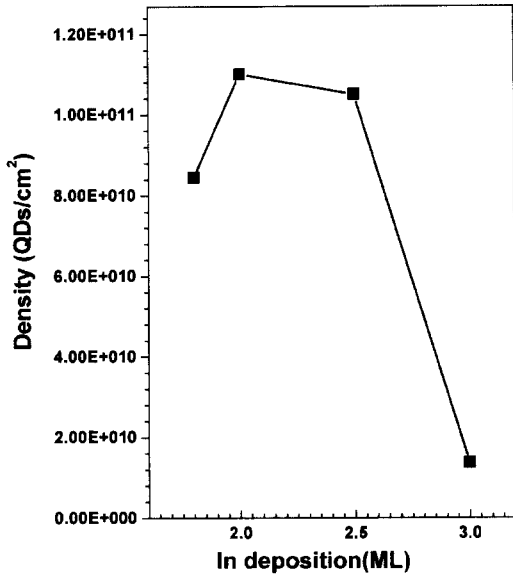


그림 2. InAs 적층량에 따른 양자점 밀도.

여 조금 더 큰 양자점으로 성장하는 모습을 관측할 수 있었다.

그림 2는 InAs 양자점의 적층량 증가에 따른 양자점의 밀도를 나타낸 것인데, InAs의 양자점은 InAs의 적층량이 2.0 ML일 때 대략 $1.1 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ 으로 최대값을 가지고 있다. 2.0 ML 이후에는 오히려 양자점 밀도가 감소하는 형태를 보여준다. 이는 2.0 ML를 기점으로 적층량이 증가하면 두 개의 양자점이 합쳐지기 때문에 밀도는 오히려 줄어들게 된다.

3.2. PL에 의한 분광학적 특성

그림 3은 InAs 양자점의 크기를 달리하여 성장한 시료의 PL을 측정된 결과이다. 1.8 ML는 양자점이 형성되기 시작하는 초기 단계이므로 발광 피크가 매우 미약하게 관측되었다. 양자점의 크기가 증가함에 따라서 피크의 위치가 낮은 에너지로 이동(Red shift)함을 볼 수가 있었는데, 이는 양자점에 의한 양자가둠 효과로 양자점의 크기가 상대적으로 커짐에 의해서 양자점 내부에 존재하는 에너지 상태가 낮아지기 때문이다. 또한 InAs의 적층량이 증가함에 따라 PL 피크의 세기가 작아지는 현상은 양자점의 밀도가 작아짐으로 인해 PL에 기여하는 양자점의 수가 작아지기 때문이다 [2, 7].

그림 4와 5는 그림 3에서 측정된 양자점 시료에 대하여 온도에 따른 발광 피크 에너지와 FWHM의 변화를

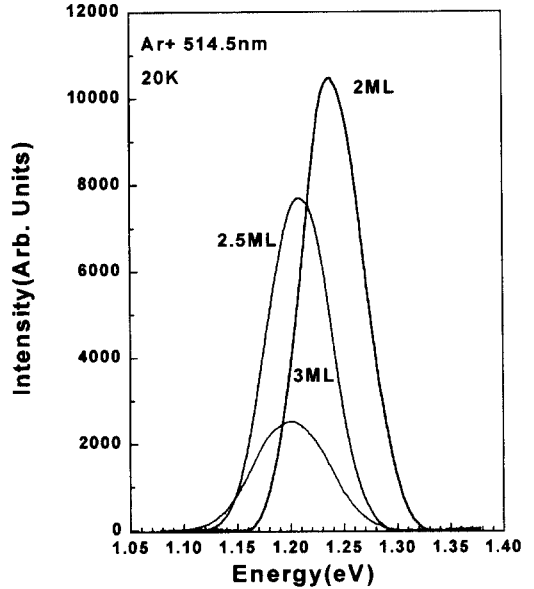


그림 3. InAs 양자점 크기에 따른 포토루미네선스.

나타낸 것이다. 온도가 증가함에 따라 피크의 위치는 장파장 영역으로 이동하고 있다. 이는 격자들의 팽창에 의한 효과와 전자와 격자사이의 상호작용에 의한 효과 등에 의해서 피크의 에너지가 낮아지게 된다. FWHM은 온도가 증가함에 따라 130 K까지는 급격히 감소하고 있다. 130~180 K 영역에서는 거의 변화가 없으며, 180 K

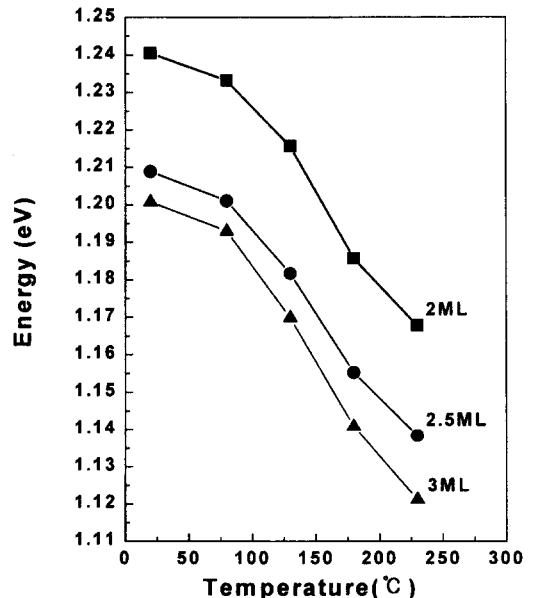


그림 4. 온도에 따른 발광 피크 에너지 변화.

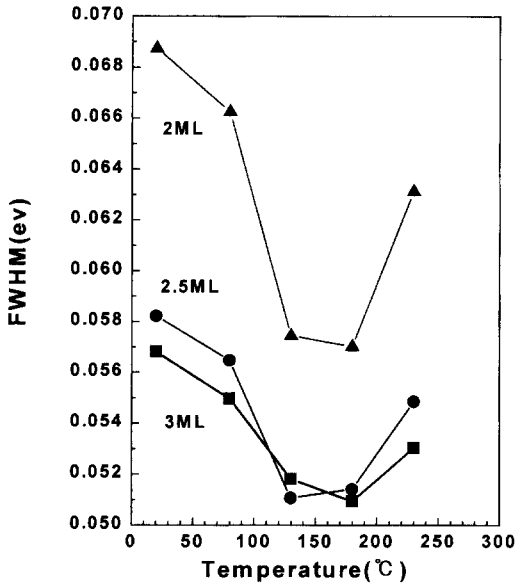


그림 5. 온도에 따른 반치폭의 변화.

이상에서는 증가하였다. 온도가 증가함에 따라서 반치폭이 줄어드는 이유는 양자점-포텐셜로부터 포토캐리어(Photo carriers)들의 열적방출(Thermionic emission) 때문이다 [2]. 한편 180 K 이상의 온도에서는 전자와 포논(Phonon)과의 충돌(Scattering)현상으로 반치폭은 다시 넓어진다 [7].

그림 6과 7은 온도에 따른 PL 피크의 integrated intensity 변화와 InAs 적층량에 따른 활성화 에너지를 나타낸 것이다. 온도가 감소함에 따라 integrated intensity는 100 K 가지는 급격히 증가하다가 100 K 이하부터는 거의 포화되는 경향을 나타내고 있다. 이들 integrated intensity의 변화는 활성화 에너지와 밀접한 관계를 가지고 있다. 즉, 온도에 따른 integrated intensity의 그래프에서 기울기는 활성화 에너지에 대응하게 된다. 온도에 따른 발광세기는 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{I(T)}{I_0} = \frac{1}{1 + CT^{3/2}e^{-E_a/kT}}$$

여기서 $CT^{3/2}$ 는 속박된 상태의 축퇴인자와 유효상태밀도에 비례하는 비율인자이며, E_a 는 활성화에너지 이고, k 는 Boltzmann 상수이다. 높은 온도 영역에서는 다음과 같이 근사적으로 활성화 에너지를 구할 수 있다 [8-10].

$$I(T) = Ce^{-E_a/kT}$$

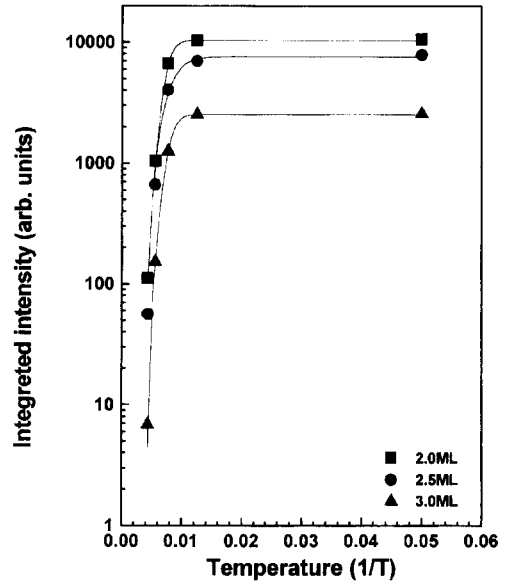


그림 6. 온도에 따른 Integrated intensity의 변화.

이들 식으로부터 fitting을 통해서 활성화 에너지를 구한 결과 230 K에서 180 K 영역에서는 InAs의 적층량의 증가에 따라 활성화 에너지는 증가하였다. 180 K에서 130 K의 영역에서는 2.5 ML에서 감소한 후 다시 3 ML에서 증가하였다. AFM의 측정결과 양자점의 크기가 2.5 ML에서 작아진 후 다시 3 ML에서 증가하는 형태를 나

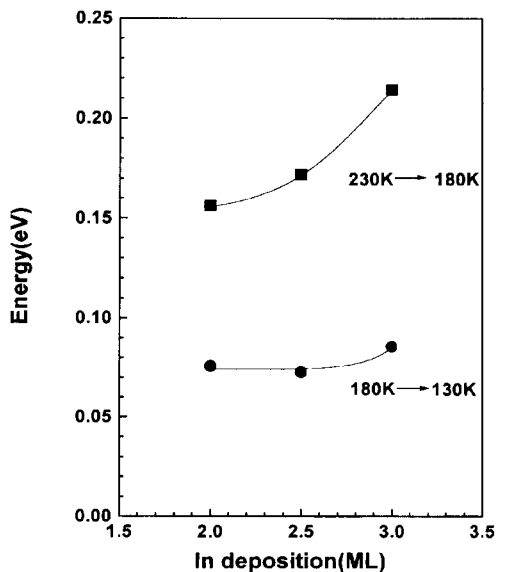


그림 7. 양자점 크기에 따른 활성화 에너지.

타내고 있었다. 따라서 2.5 ML에서 활성화 에너지가 감소한 이유는 양자점의 크기 변화와 관련성을 가지고 있으리라 예측하고 있다. 하지만 전체적인 경향은 InAs 양자점의 크기가 증가함에 따라 활성화 에너지가 증가하고 있다. 따라서 양자점의 크기에 따라 결합상태의 에너지가 변화한다는 것을 알 수 있다 [7].

4. 결 론

본 연구에서는 InAs 양자점의 크기를 달리하여 성장한 시료에 대하여 구조적 및 분광학적 특성을 조사하였다. AFM 측정결과 양자점의 밀도는 2 ML에서 최대 값인 $1.1 \times 10^{11}/\text{cm}^2$ 이었으며, 더 많은 InAs를 성장하면 오히려 양자점의 밀도는 감소하였다. 양자점의 크기가 증가함에 따라 PL 피크는 적색편이를 하였다. 이는 양자점에 의한 양자가둠 효과로 양자점의 크기가 상대적으로 커짐에 의해서 양자점 내부에 존재하는 에너지 상태가 낮아지기 때문이다. 발광피크의 온도의존성을 조사한 결과 온도가 증가함에 따라 피크의 위치는 장파장 영역으로 이동하고 있었으며, FWHM은 130 K까지는 급격히 감소하다 다시 증가하는 경향을 보였다. 한편 InAs 양자점의 크기가 증가함에 따라 활성화 에너지는

증가하였다.

참고문헌

- [1] R. N. Nottenburg, Y. K. Chen, M. B. Panish, D. A. Humphrey, and R. Hamm, IEEE Electron. Device Lett. **EDL-10**, 30 (1989).
- [2] J. Y. Marzin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994).
- [3] M. Grassi Alessi *et al.*, Phys. Rev. B, **59**, 7620 (1999).
- [4] Y. Nabetani, T. Ishikawa, S. Noda, and A. Sasaki, J. Appl. Phys. **76**, 347 (1994).
- [5] T. Cho, S. Hong, Y. S. Kwon, J. W. Kim, and J. E. Oh, "A quantum-dot long-wavelength infrared photodetector operating at room temperature" accepted for publication in Appl. Phys. Lett. (1999).
- [6] Hao Lee, Roger Lowe-Webb, Weidong Yang, and Peter C. Sercel, Appl. Phys. Lett. **72**, 812 (1998).
- [7] Y. T. Dai *et al.*, J. Appl. Phys. **82**, 4489 (1997).
- [8] M. Suezawa, Y. Sasaki, and K. Sumino, Phys. Stat. Sol. **79**, 173 (1983).
- [9] R. Sauer, J. Weber, J. Stoltz, E. R. Weber, K.-H. Kuster, and H. Alex-ander, Appl. Phys. A: Solids Surf. **36**, 1 (1985).
- [10] V. V. Kveder, E. A. Steinman, and H. G. Grimmeiss, J. Appl. Phys. **78**, 446 (1995).