

InP 기판에 성장한 자발형성 InAs/InAl(Ga)As 양자점의 구조 및 광학적 특성

김진수* · 이진홍 · 홍성의 · 곽호상 · 최병석 · 오대곤

한국전자통신연구원 IT융합부품연구소, 대전 305-350

(2006년 2월 23일 받음)

분자선증착기 (Molecular beam epitaxy, MBE)를 이용하여 InP (001) 기판에 자발형성 (Self-assembled) InAs/InAlAs, InAs/InAlGaAs 양자점 (Quantum dots, QDs)을 형성하고 구조 및 광학적 특성을 원자력간현미경(Atomic force microscopy, AFM), 투과전자현미경 (Transmission electron microscopy, TEM), 상온 포토루미네스스 (Photoluminescence, PL) 실험을 통하여 분석하였다. AFM 측정을 통해 표면 형태를 분석한 결과 InAs 양자구조는 기저물질의 표면상태에 따라 양자대쉬, 비대칭적인 형태를 갖는 양자점, 대칭적인 형태를 갖는 양자점과 같이 다양하게 성장되었다. InAlGaAs 물질을 장벽층으로 하는 InAs 양자점의 평균크기는 폭이 대략 23 nm, 높이가 약 2 nm 이었다. 성장조건을 다양하게 변화시켜 광통신시스템에 중요한 파장중의 하나인 1.55 μm 발광과장을 갖는 InAs 양자점을 형성하였다.

주제어 : 분자선 증착기, 양자점, 1.55 μm

I. 서 론

최근, 3차원 양자구속효과 (Quantum-confinement effect)를 갖는 양자점 (Quantum dot, QD)에 대한 관심이 기초 학문분야뿐만 아니라 소자응용까지 다양하게 확산되고 있다. 특히, Stranski-Krastanov 성장모드를 이용한 자발형성 (Self-assembled) 반도체 양자점에 대한 연구가 기초 물리학분야와 광전소자 응용측면에서 활발하게 진행되고 있다 [1,2]. 이론적으로 양자점을 활성층 (Active medium)으로 갖는 광소자의 경우, 양자우물 (Quantum well)을 비롯한 기존 양자구조를 활성층으로 갖는 경우에 비해 특성이 현저하게 개선될 것으로 기대 되고 있다 [1,2]. 예로써, 양자점 레이저다이오드 (Laser diode)는 낮은 문턱전류 (Threshold current), 높은 양자 이득 (Quantum efficiency), 그리고 높은 열적 안정성 (Thermal stability)이 있을 것으로 기대 된다.

GaAs 기판에 자발형성 In(Ga)As 양자점에 대한 연구가 가장 활발하게 진행되고 있으며, 최근 이를 이용한 레이저다이오드에서 매우 좋은 결과들이 보고되고 있다 [2,3]. 그러나 GaAs 기판에 In(Ga)As 양자점을

형성한 경우, 상온에서 발광과장이 1.1~1.3 μm 영역에 위치하고 있기 때문에, 1.55 μm 파장영역에서는 InP 기판을 이용한 연구가 주로 진행되고 있다 [4-6]. InP 기판에 In(Ga)As 양자점을 형성하는 경우, In(Ga)As/GaAs 양자점에 비해 상대적으로 격자 부정합 (Lattice-mismatch)이 적고, 계면에서 발생하는 화학작용 (Chemical reaction)등으로 인해 양자점의 모양, 크기, 균일도, 공간적 밀도 제어에 한계가 있다. 예로써, InP 기판에 In(Ga,As)P를 성장하고 In(Ga)As 양자점을 형성 할 때, As/P 상호교환 (Exchange) 현상이 나타나거나, InAl(Ga)As 물질의 경우, 상분리 (Phase separation) 현상에 기인한 양자대쉬 (Quantum dash)나 양자세선 (Quantum wire)을 형성하는 등 다양한 문제점들이 보고 되고 있다 [7-9]. InAs/InP 양자점 구조에서 양자점의 성장특성을 제어하기 위하여 응력층 (Strained layer)을 이용하거나, III족 물질의 성장거동을 제어한 결과들이 발표 되고 있다 [10]. 또한 InAs/InAlGaAs/InAlAs 구조를 갖는 장파장용 레이저 다이오드를 제작하여 그 결과를 발표하고 있는데, 이들 대부분은 양자점이라기 보다는 양자대쉬 형태를 갖고 있다 [8,9]. 본 연구가

* [전자우편] kjinsoo@etri.re.kr

룹에서는 InAlGaAs-InAlAs-InP (001) 물질계를 이용하여 양자대쉬 구조가 아닌 양자점을 형성하고, 이를 이용하여 레이저다이오드 제작하고 특성을 분석한 결과를 발표하였다 [11-13]. 특히, 상온에서 1.55 μm 파장에서 단일모드로 발진하는 레이저다이오드를 제작하고 이를 세계최초로 보고하였다 [13].

본 논문에서는 분자선증착기 (Molecular beam epitaxy, MBE)를 이용하여 상용 InP (001) 기판에 격자정합 (Lattice-matched)한 InAl(Ga)As 물질을 장벽층으로 하는 자발형성 InAs 양자점을 형성하고 광 및 구조적 특성을, 원자력간현미경 (Atomic force microscopy, AFM), 투과전자현미경 (Transmission electron microscopy, TEM) 및 상온 PL (Photoluminescence spectroscopy)을 이용하여 분석하였다.

II. 실험

본 논문에서 사용된 InAs 양자점 시료는 n-InP (001) 기판에 VG Semicon사에서 제작한 V80 분자선증착기를 이용하여 제작하였다. InAlAs 혹은 InAlGaAs 완충층 (Buffer layer)을 성장하고 InAs 물질의 증착량을 다양하게 변화시켜 양자점 형성 특성을 살펴 보았다. AFM을 이용해 표면 이미지를 살펴 보기 위하여, 양자점을 형성하고 기판 온도를 250 $^{\circ}\text{C}$ 까지 급격히 내렸다. 표면의 원자들이 재결합해서 양자점 모양의 변형이 일어날 확률을 줄이기 위해 온도를 내리는 동안 As을 계속해서 공급하였다. PL과 TEM 실험을 위해 같은 성장 조건에서 양자점을 형성하고 짧은 시간의 성장차단을 수행한 후, 장벽물질인 InAlAs 혹은 InAlGaAs 증착 하였다. 또한 InAlGaAs 물질을 장벽층으로 하는 InAs 양자점 형성특성이 성장변수에 따라 어떻게 변화하는지 연구하기 위해 성장 챔버의 Background pressure (BP)와 성장온도를 변화시켜 시료를 제작하고 분석하였다.

양자점의 표면 이미지는 PSIA (Park scientific instruments asia)에서 제작한 AFM (XE-100 모델)을 이용하여 비접촉방식 (Non-contact)을 통해 분석하였다. PL은 상온에서, 여기 광원으로 아르곤 이온 레이저를 이용하였고 질소로 냉각된 Ge 광검출기를 통해 측정하였다. TEM 시료는 표준과정인 이온 밀링 (Milling)과 덤플링 (Dimpling)을 통해 제작하고, 200 keV에서 동작하는 Philips EM20 모델을 이용하여 측정하였다.

III. 결과 및 논의

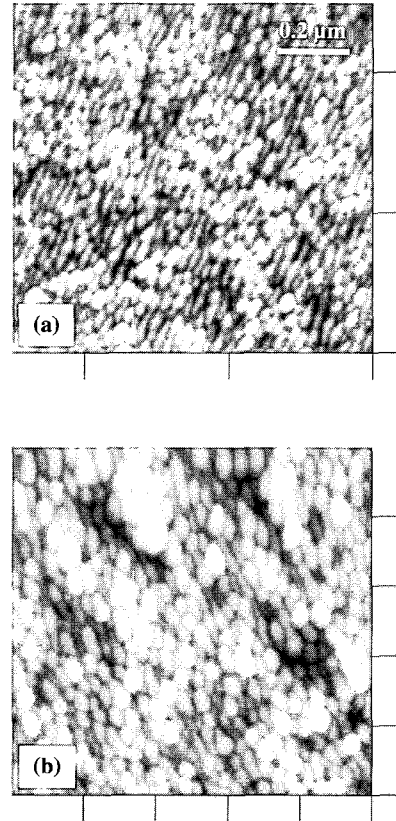


그림 1. InAlAs 물질층 위에 InAs 증착량을 변화시켜 형성한 양자점 시료의 표면 이미지; (a) 5.6 ML, (b) 6.4 ML.

그림 1은 InP 기판에 격자 정합한 InAlAs을 성장하고 그 위에 InAs 증착량을 (a) 5.6 ML와 (b) 6.4 ML로 형성한 양자점 시료의 표면 이미지를 나타낸 것으로 양자점이 잘 형성되어 있음을 알 수 있다. 6.4 ML의 증착량을 갖는 InAs 양자점의 경우 (그림1(b)), 양자점의 평균 너비는 약 44 nm 높이가 약 5 nm 이고 면밀도는 약 $5 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ 이다. 성장조건에 따라 약간의 차이는 있지만 양자점의 모양이 [1-10] 방향이 상대적으로 큰 비대칭적인 형태를 갖고 있다. 이러한 비대칭적인 형태를 갖는 주된 원인으로는 양자점이 형성되기 직전의 InAlAs 표면에 존재하는 상분리에 기인하는 것으로 설명할 수 있다. 즉 주어진 성장 온도에서 III족 물질인 In과 Al 원자의 성장거동이 서로 차이가 나서 표면이 완벽한 평면을 갖는 것이 아니라, 일정한 방향성을 가지면서 형성되기 때문이다 [8,9,14]. 이런 표면에 InAs 물질을 증착하면 양자점이 기저물

질의 표면 상태를 따라 형성 되기 때문에 비대칭 형태를 갖는 것으로 설명할 수 있다. 그림 1(a)에서, 양자점과 함께 양자대쉬와 같은 구조가 보이는데 이는 InAlAs의 고유한 특성인 상분리 현상에 의한 간접적인 증거라고 할 수 있다. 그림 2는 이렇게 형성한 InAs 양자점을 InAlAs으로 덮은 시료를 상온 PL로 측정 한 것으로 증착양에 따라 발광 파장이 1.2~1.7 μm 까지 다양하게 변화시킬 수 있다. 성장조건을 변화

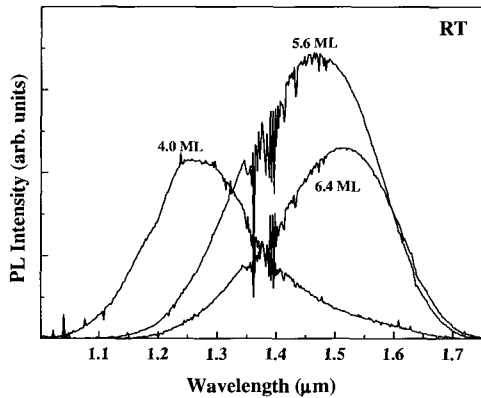


그림 2. InAlAs 물질을 장벽층으로 하는 InAs 양자점 시료의 상온 PL.

시켜 발광 파장을 광통신대역의 중요한 파장중의 하나인 1.55 μm 를 쉽게 얻을 수 있었다. 약 1.4 μm 파장 근처의 신호들은 공기흡수에 의한 것이다. 상온 PL에서 측정 한 반치폭 (Linewidth)은 모두 100 meV를 넘는 값을 보이고 있는데 이는 그림 1에서 보는 것처럼, 양자점의 균일도가 좋지 않기 때문이다.

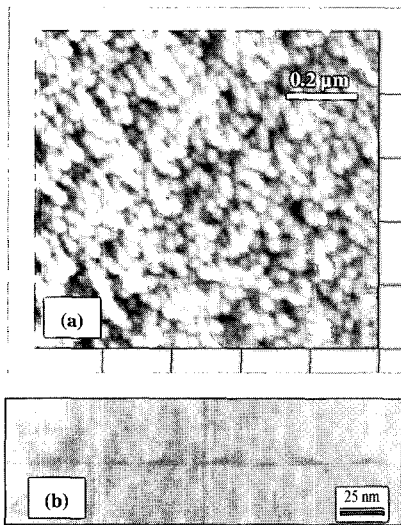


그림 3. (a) InAlGaAs 물질층 위에 형성한 InAs 양자점 시료의 표면 이미지, (b) InAlGaAs 물질을 장벽층으로 하는 InAs 양자점의 단면 TEM.

그림 3(a)는 InP 기판에 격자 정합한 InAlGaAs 물질을 성장하고 그 위에 5.6 ML 두께를 갖는 InAs 물질을 증착한 후 얻은 표면 이미지이다. 양자점의 면밀도는 약 $6 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ 이다. 그림 1의 InAlAs 물질에 형성한 InAs 양자점과 비교할 때 양자점의 대칭성이 개선되고 크기가 상대적으로 작아졌으며 균일도도 향상되었다. 이는 InAlAs에 비해 In과 Al의 성장 거동이 새롭게 공급된 Ga 원자 때문에 영향을 받게 되고 결과적으로 표면 상태가 달라 졌기 때문으로 설명할 수 있다. 즉 InAlAs에서 나타난 상분리가 Ga 원자의 공급으로 다소 완화된 것으로 볼 수 있다. 기존 보고에 따르면 InAl(Ga)As 물질에 InAs 물질을 증착하면 양자구조가 양자점이 아닌 양자대쉬나 양자세션이 형성되는 결과가 대부분이다. 독일 뷔르츠부르크 대학 (Wuerzburg University)의 Forchel 그룹이나 미국 뉴멕시코 대학 (University of New Mexico)의 Wang 그룹은 InAlGaAs 물질 위에 InAs 양자대쉬 구조를 형성하고 이를 활성층으로 이용하여 레이저다이오드를 제작하고 그 특성을 보고하였다 [8,9]. 그러나, InAs 양자구조가 양자대쉬나 양자세션 구조인 경우, 모양에 기인한 내부전계 (Internal electric field)가 형성되고 결과적으로 레이저다이오드와 같은 소자를 제작할 때 그 방향성을 제약 받게 된다. 또한 내부전계 때문에 전자 (Electron)와 정공 (Hole)의 파동함수 (Wave-function) 중첩 정도 (Overlap integral)가 급격히 적어지게 되어 광특성이 현저히 나빠지는 문제점이 있다 [15]. 따라서 본 연구에서 InAl(Ga)As 물질층에 InAs 양자대쉬 구조가 아닌 양자점을 형성한 것이 의미 있다고 할 수 있다. 그림 3(b)는 InAlGaAs 물질을 장벽층으로 갖는 5.6 ML InAs 양자점의 단면 TEM 이미지를 나타낸 것으로 평균 너비는 약 23 nm 높이는 약 2 nm의 크기를 갖는다. 양자점의 크기가 AFM 표면 이미지에서 얻은 것보다 작은 이유는 InAs 양자점과 InAlGaAs 장벽층 계면에서 III족 물질의 상호 확산 (Inter-diffusion) 작용에 의한 것이다 [16].

그림 4는 InAlGaAs 물질을 장벽층으로 하고 InAs 증착양을 달리하여 성장한 양자점 시료의 상온 PL을 나타낸 것으로 발광 파장은 1.55 μm 근처에 있다. 1.17 μm 에 있는 신호는 장벽층으로 사용한 InAlGaAs 물질의 발광 특성에 의한 것으로 양자점층을 형성하지 않고 성장한 시료로부터 확인하였다. 증착양이 증가함에 따라 발광 파장이 장파장으로 이동하는데 이는 양자점의 크기가 증가하였기 때문으로 설명할 수

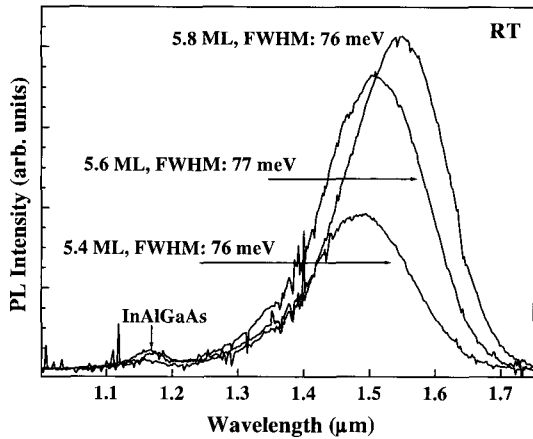


그림 4. InAlGaAs 물질을 장벽층으로 하는 InAs 양자점 시료의 상온 PL.

있다. 상온 PL의 반치폭은 대략적으로 76 meV 정도를 나타내고 있다. InAlAs 위에 형성한 InAs 양자점의 경우에 비해 반치폭이 개선되었는데 이는 상대적으로 균일한 양자점이 형성되었기 때문으로 설명할 수 있다. 그러나 반치폭이 개선되었다 하더라도 여전히 큰 값을 갖기 때문에 기저상태 (Ground states)와 여기상태 (Excited states)에 대한 명확한 분리가 관측되지 않고 있다. 양자점의 균일도가 좋지 않아 크기에 따른 기저상태와 여기상태가 각각 다르고 이들이 혼재되어 있기 때문이다. 그림 3(b)의 TEM 이미지에 나타나 있는 InAs/InAlGaAs 양자점의 크기를 고려해 보면, 평균너비가 20 nm 근처이고 폭이 3~5 nm 크기를 갖는 InAs/GaAs 양자점을 비교할 때 [4], 상온에서 상대적으로 매우 긴 1.55 μm의 발광파장을 갖는 것이 특이하다. 이는 양자점과 주변물질간의 응력 차로 설명할 수 있는데, InAs/GaAs 양자점 구조에서 InGaAs과 같은 응력감소층 (Strain-reducing layer)을 이용하여 장파장으로 이동시키는 것과 비슷한 이유이다 [4]. 즉, InAs 양자점과 InAlGaAs 장벽층 사이에 응력차가 InAs과 GaAs 사이의 그것보다 작기 때문으로 설명할 수 있다.

그림 5는 장벽층과 양자점 층을 형성할 때 성장 챔버의 BP에 따른 상온 PL을 나타낸 것으로 간접적으로 III/V족 비율에 따른 특성으로 볼 수 있다. 즉, BP의 변화는 III족 물질의 Flux 양을 고정하고 As 양을 조절하여 얻은 것이기 때문이다. 그림 5(a)는 InAs 양자점 층 성장시 BP를 일정하게 유지하고 InAlGaAs 장벽층 성장시 BP를 각각 변화시키면서 형성한 시료의 상온 PL을 나타낸 것이다. 그림에서

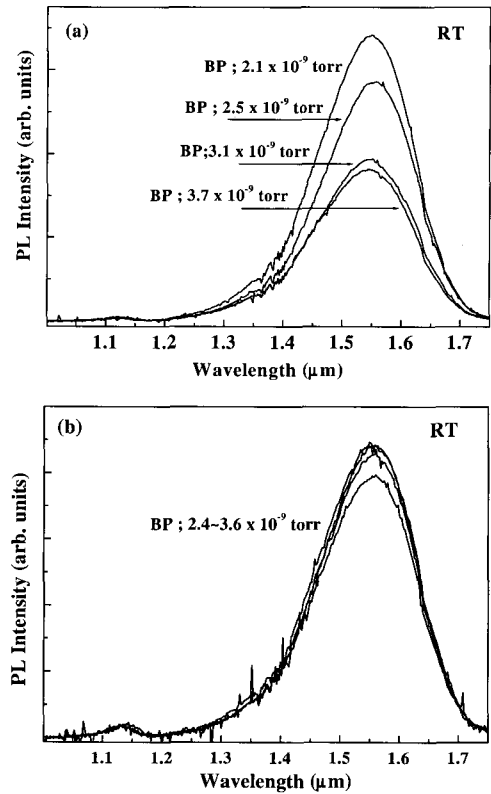


그림 5. (a) InAs 양자점층 성장시 BP를 일정하게 유지하고 InAlGaAs 장벽층 성장시 BP를 변화시키면서 형성한 양자점 시료의 상온 PL, (b) InAlGaAs 장벽층 성장시 BP를 일정하게 유지하고 InAs 양자점 성장시 BP를 변화시키면서 형성한 양자점 시료의 상온 PL.

보듯이 BP가 증가할수록 발광 세기가 감소하는데 이는 과도한 As이 공급되어 InAlGaAs 물질층의 특성이 나빠졌기 때문이다. 그림 5(b)는 InAlGaAs 장벽층의 BP를 일정하게 유지하고 양자점층의 BP를 각각 변화시키면서 성장한 시료의 상온 발광 특성을 나타낸 것이다. 그림에서 보듯이 양자점층 성장시 BP가 크게 변화하더라도 발광 세기, 파장 및 반치폭 등이 크게 변화하지 않음을 알 수가 있다. BP를 변화시켜 성장한 시료의 상온 PL로부터, InAs 양자점 형성 특성은 InAlGaAs 물질의 형성특성에 크게 좌우하는 것으로 생각 된다. 그림 1과 그림 2에서 InAs 양자점 형성특성이 InAlAs 이나 InAlGaAs 물질층에 따라 크게 변화되고 있음을 알 수 있었는데 이 또한 BP 의존성 실험에서와 같은 의미로 볼 수 있다. 본 실험에 사용된 분자선증착기의 실험조건하에서, 양질의 양자점을 형성하기 위해서는 InAl(Ga)As 물질의 표면 특성이 다른 성장변수에 비해 상대적으로 매우 중요한 변수임을 간접적으로 나타내준다.

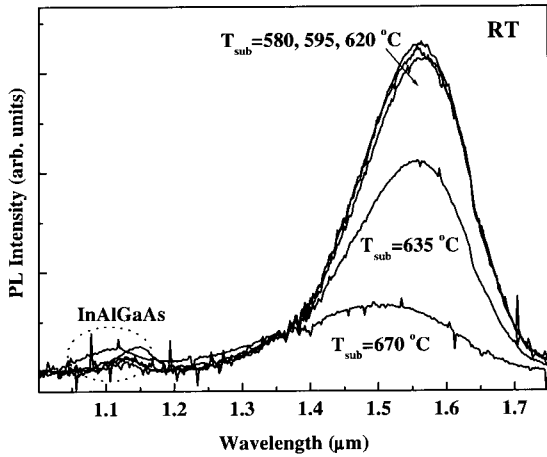


그림 6. InAlGaAs 장벽층의 성장온도를 변화시키면서 형성한 InAs 양자점 시료의 상온 PL.

그림 6은 양자점의 성장온도를 일정하게 하고, 장벽층의 성장 온도 (열센서온도)를 변화시켜 형성한 시료의 상온 PL을 나타낸 것이다. 장벽층의 성장온도가 580, 595 및 620 °C 인 경우, 상온 PL의 발광세기, 파장, 반치폭 등이 크게 변화하지 않는데 반해, 635 °C가 되면 발광세기 감소하고 파장이 미약하지만 단파장으로 이동하고 있다. 온도를 670 °C로 좀 더 높이면 발광세기는 현저히 감소하고 발광피크가 단파장으로 많이 움직였다. 이는 InAlGaAs 장벽층이 성장온도에 민감한 (예로써 격자정합조건) 4원계 화합물이기 때문에 일정온도까지는 특성이 크게 변화하지 않다가 어느 임계온도가 되면 의미 있게 변화되었기 때문으로 설명할 수 있다. 또한 InAs 양자점과 InAlGaAs 물질 간의 상호 확산이 온도에 따라 다르게 나타났기 때문이다. GaAs 물질을 장벽층으로 하는 InAs 양자점에서 보고 되어있듯이 열처리 온도가 증가하면 발광파장이 단파장으로 이동하는 현상과 같은 맥락으로 볼 수 있다 [16]. 즉, InAlGaAs 물질과 InAs 물질간의 원자간 상호 확산현상이 620 °C까지는 크게 일어나지 않다가 그 이상의 온도가 되면 의미 있게 증가하기 때문이다.

IV. 결 론

분자선증착기를 이용하여 InP 기판에 InAl(Ga)As 물질계를 갖는 InAs 양자점 시료를 성장변수를 다양하게 변화시켜 제작하고 구조 및 광학적 특성을 분석하였다. InAlAs 이나 InAlGaAs 물질계에서 원형 모양을 갖는 양자점을 형성하였고 이는 같은 물질계를 이용하여 양자대쉬나 양자세선 구조를 보고한 기준

결과와 다른 형태를 갖는다. 이상적인 0-차원구조의 관점에서 InAl(Ga)As 물질층에 InAs 양자대쉬가 아닌 양자점을 형성한 것이 의미 있다고 할 수 있다. 성장조건을 다양하게 변화시켜 광통신시스템에 중요한 파장중의 하나인 1.55 μm 발광파장을 갖는 InAs 양자점을 형성하였다. 또한 본 실험에 사용된 분자선증착기의 실험조건하에서, 양질의 양자점을 형성하기 위해서는 InAl(Ga)As 물질의 표면 특성이 다른 성장변수에 비해 상대적으로 매우 중요한 변수임을 간접적으로 확인하였다.

감사의 글

본 논문은 정보통신부 지원 (과제계정번호; 06MB2510)에 의해 이루어진 연구결과로서 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] Y. Arakawa and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. **40**, 939 (1982).
- [2] G. Park, O. B. Shechekin, D. L. Huffaker, and D. G. Deppe, IEEE Photon. Technol. Lett. **12**, 230 (2000).
- [3] F. Klopff, R. Krebs, A. Wolf, M. Emmerling, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, Electron. Lett. **37**, 634 (2001).
- [4] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, W. S. Han, H.-S. Kwack, C. W. Lee, and D. K. Oh, J. Appl. Phys. **94**, 6603 (2003).
- [5] J. W. Jang, S. H. Pyun, S. H. Lee, I. C. Lee, W. G. Jeong, R. Stevenson, P. D. Dapkus, N. J. Kim, M. S. Hwang, and D. Lee, Appl. Phys. Lett. **85**, 3675 (2004).
- [6] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, H.-S. Kwack, B. S. Choi, and D. K. Oh, Appl. Phys. Lett. **87**, 053102 (2005).
- [7] S. Yoon, Y. Moon, T.-W. Lee, E. Yoon, and Y. D. Kim, Appl. Phys. Lett. **74**, 2029 (1999).
- [8] R. Schwertberger, D. Gold, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, J. Crystal Growth **251**, 248 (2003).
- [9] R. H. Wang, A. Stintz, P. M. Varangis, T.

- C. Newell, H. Li, K. J. Malloy, and L. F. Lester, *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **13**, 767 (2001).
- [10] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, W. S. Han, H.-S. Kwack, and D. K. Oh, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 3785 (2003).
- [11] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, H.-S. Kwack, C. W. Lee, and D. K. Oh, *IEEE Photon. Tech. Lett.*, **16**, 1607 (2004).
- [12] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, H.-S. Kwack, C. W. Lee, and D. K. Oh, *ETRI J.*, **26**, 475 (2004).
- [13] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, H.-S. Kwack, B. S. Choi, and D. K. Oh, *IEEE Photon. Tech. Lett.*, **18**, 595 (2006).
- [14] J. Brault, M. Gendry, G. Grenet, G. Hollinger, J. Olivares, B. Salem, T. Benyattou, and G. Bremond, *J. Appl. Phys.*, **92**, 506 (2002).
- [15] L. V. Asryan, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, R. A. Suris, and D. Bimberg, *J. Appl. Phys.*, **90**, 1666 (2001).
- [16] S. J. Xu, X. C. Wang, S. J. Chua, C. H. Wang, W. J. Fan, J. Jiang, and X. G. Xie, *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 3335 (1998).

Structural and Optical Properties of Self-assembled InAs/InAl(Ga)As Quantum Dots on InP

Jin Soo Kim^{*}, Jin Hong Lee, Sung Ui Hong, Ho-Sang Kwack,
Byung Seok Choi, and Dae Kon Oh

*IT Convergence & Components Laboratory, Electronics and Telecommunications
Research Institute (ETRI), Daejeon 305-350*

(Received February 23, 2006)

Self-assembled InAs/InAl(Ga)As quantum dots (QDs) were grown on InP substrates by a molecular-beam epitaxy, and their structural and optical properties were investigated by atomic force microscopy (AFM), transmission electron microscopy (TEM), and room-temperature photoluminescence (PL). AFM images indicated that the InAs quantum structures showed various shapes such as quantum dashes, asymmetric and symmetric QDs mainly caused by the initial surface conditions of InAl(Ga)As with the intrinsic phase separation. For the buried InAs QDs in an InAlGaAs matrix, the average lateral size and height of QDs were 23 and 2 nm, respectively. By changing the growth conditions for the QD samples, the emission wavelength of 1.55 μm was obtained, which is one of the wavelength windows for fiber optic communications.

Keywords : Molecular beam epitaxy, Quantum dot, 1.55 μm

* [E-mail] kjinsoo@etri.re.kr