

이중 크기분포를 가지는 자발형성 InAs 양자점의 광특성 평가

정순일^{1,3} · 여현영^{1,3} · 윤일구¹ · 한일기² · 이주인^{3*}

¹연세대학교 전기전자공학과, 서울 120-749

²한국과학기술연구원 나노소자연구센터, 서울 136-791

³한국표준과학연구원 첨단산업측정그룹, 대전 305-340

(2006년 2월 24일 받음)

서로 다른 성장조건 하에서 자발형성 InAs 양자점 (quantum dot, QD)을 제작하고, 그 특성을 photoluminescence (PL) 로 분석하였다. 비교적 높은 기판온도에서 성장된 QD 시료들의 PL 스펙트럼에서 분명한 차이를 나타내는 double-peak이 관측되었다. 온도 및 여기광 출력의존성 (temperature- and excitation power dependence) PL을 이용하여 그 double-peak이 서로 다른 크기분포를 가지는 두개의 InAs QD집단에서의 기저발광 (E_0) 에 의한 peak 임을 알 수 있었다. 게다가 이중크기분포에서 InAs 두께변화는 서로 대립되는 두 QD집단에서 QD 수의 변화를 초래한다는 것 또한 증명하였다.

주제어 : 양자점, InAs, 이중크기분포, Photoluminescence

1. 서 론

양자점 (quantum dot, QD) 구조는 3차원 (3-D) 적으로 구속된 0차원 (0-D) 의 극한 물리계로서, 고차원 (3/2/1-D) 계에는 존재할 수 없는 원자 에너지 준위와 유사한 δ 함수적 상태밀도에 기인한 그 고유의 물리전자 및 광 분광학적 특성 때문에 초고속, 초고주파, 초고집적, 초저전력의 차세대 레이저다이오드 (LD), 발광소자 (LED), 광 검출기 (PD), 광 변조기 (OM), 단전자트랜지스터 (SET) 등에 폭넓게 응용되고 있다. 이러한 소자들을 실현하기 위해서는 표면결함이 거의 없는 나노구조가 형성되어야 하는데, 지금까지는 2-D 구조인 양자우물 (quantum well, QW) 을 직접식각 (direct etching) 또는 재성장 (overgrowth) 하거나 식각기판을 사용한 선택성장 (selective growth) 방법으로 QD를 제작하려는 시도가 이루어졌으나 표면결함과 크기제한의 한계 때문에 실용화 수준에 이르지 못하였다. 이러한 원천적인 기술 한계를 극복하고 실용 소자에 적용 가능한 QD를 형성시킬 수 있는 방법은 이중구조 표면/계면에서 일어나는 결정학적 평형상태를 적극적으로 활용하여 자발적으로 초미세 구조 성장을 유도하는 QD 제작법 즉, Stranski-Krastanov (S-K) 성장모드에 의한 자

발형성 (self-assembly) 법이다 [1-4].

자발형성 된 QD 구조가 LD, LED, PD, OM, SET 등의 활성층에 채용되어 그 고유의 0-D 소자특성을 나타내기 위해서는 결함, 모양, 크기, 밀도, 균일도, filling factor 등을 정교하게 제어 및 그 특성을 정확하게 측정할 수 있는 기술이 우선적으로 개발되어야 한다. 한 예로 자발형성 된 QD의 광 특성평가에서 온도의 영향 및 여기광원의 세기는 양자점 연구에 있어 가장 중요한 것 중의 하나이자, 양자구조 (quantum structure) 를 이해하기 위한 중요한 변수이다. 이에 많은 저자들이 자발형성 양자점의 photoluminescence (PL) 특성에서 온도 및 여기광 출력의존성 (temperature- and excitation power dependence) 을 이용해 많은 연구를 진행하고 있으며, 그에 대한 좋은 결과들도 많이 나오고 있는 추세이다 [5-9].

본 연구에서는 특정조건 하에서 일어나는 두 종류의 크기 분포를 가지는, 이중크기분포 (bimodal size distribution) single InAs/GaAs QD 구조의 근원적인 (intrinsic) 특성 및 원인규명에 관해서 논한다. 특히, 양자점 형성 시 성장조건 변화는 서로 다른 양자점 크기 분포의 결과를 가져온다는 것을 온도 및 여기광 세기의존성 PL을 이용하여 조사하였다.

* [전자우편] jilee@kriss.re.kr

II. 실험방법

성장조건에 따른 자발형성 양자점 구조의 특성을 분석하기 위해 Riber-32P molecular beam epitaxy (MBE) 시스템을 이용, S-K 성장모드에 의한 자발형성법으로 single InAs/GaAs QD 구조를 성장시켰다. 560 °C에서 반절연성 (semi-insulating, SI) GaAs (100) 기판 위에 두께 300 nm의 GaAs 완충층 (buffer layer) 을 쌓은 후, 440과 480 °C의 기판온도와 2.5와 3.0 monolayer (ML) 의 InAs의 두께를 적절히 조합하여 서로다른 3종류의 InAs QD를 성장시켰다. 이때 InAs QD의 형성은 *in-situ* reflection high-energy electron diffraction (RHEED) 패턴을 이용하여 2D에서 3D로 변이 되는 것을 관측 하므로 인해 알 수 있었다. 이때 InAs 양자점의 성장률은 0.07 ML/s로 하였다. 시료의 분광학적 특성 조사를 위해 InAs 양자점을 성장한 후 그 위에 25 nm 두께의 GaAs 덮개층 (cap layer) 을 기판온도 440 °C에서 성장했다. 3종류의 양자점 성장구조에서 InAs 양자점의 성장조건을 달리한 것 이외에는 모든 조건 및 구조가 동일하게 하였다. 결과적으로 시료A의 InAs 양자점 성장조건은 기판온도 440 °C와 2.5 ML의 InAs 두께, 시료 B는 480 °C와 2.5 ML, 시료 C는 480 °C와 3.0 ML를 가진다.

PL은 standard phase lock-in technique을 이용했다. Ar-ion 레이저의 514.5 nm line을 여기광 (excitation source) 으로 사용했고, 형광 신호는 1 m monochromator와 액체질소 (LN₂) 로 냉각된 Ge 검출기를 이용해서 측정 했다. 시료를 16에서 300 K까지 온도를 변화 시키면서 온도의존성 PL을 측정하기 위해서 closed-cycle helium cryostat을 사용했다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 1는 서로 다른 기판온도와 InAs 두께의 조건을 가지는 자발형성된 InAs QD시료들을 저온 (16 K) 에서 1 mW의 여기광으로 측정한 PL 스펙트럼이다. 모든 PL 스펙트럼은 각기 다른 peak 모습을 나타내고 있고, 낮은 여기광의 세기에도 매우 강한 PL 세기를 보여주고 있다. Fig. 1(a)에서 보여지는 것처럼 시료A (성장조건: 440 °C의 기판온

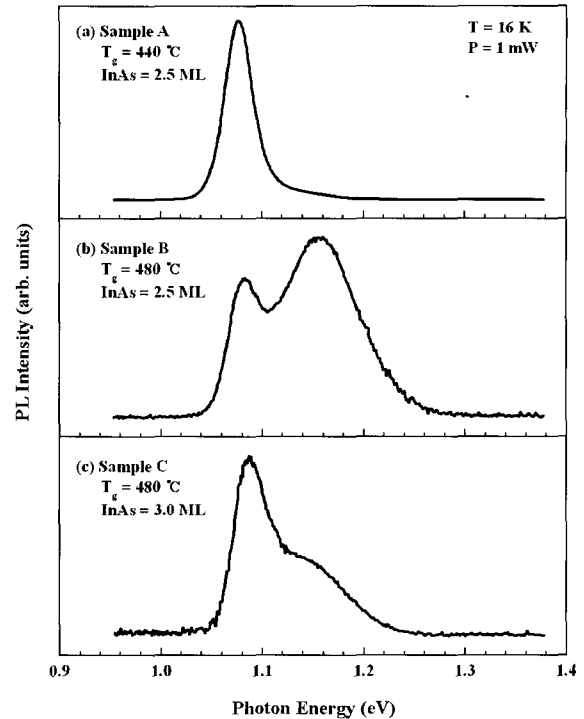


Fig. 1. PL spectra from (a) the A sample (substrate temperature of 440°C / InAs coverage of 2.5 ML), (b) the B sample (480°C / 2.5 ML) and (c) the C sample (480°C / 3.0 ML).

도와 2.5 ML의 InAs 두께)의 PL 스펙트럼은 중심이 1.075 eV인 단일peak으로 이루어져 있는데, 이는 자발형성된 InAs QD의 전형적인 PL 스펙트럼 모습이다 [10-11]. 그러나 시료B (성장조건: 480 °C의 기판온도와 2.5 ML의 InAs 두께)와 시료C (성장조건: 480 °C의 성장온도와 3.0 ML의 InAs 두께)의 PL 스펙트럼은 다른 양상을 보인다. 이 두 시료의 스펙트럼과 시료A의 스펙트럼을 비교했을 때, 기존의 1.075 eV위치의 peak 외에 1.160 eV위치에 새로운 peak가 생겨난 것을 볼 수가 있는데, 이것은 발광 에너지가 다른, 2종류 QD크기를 가지는 이중크기분포가 존재함을 암시하는 결과이다. 하지만 2개의 에너지 상태를 가지는 단일크기분포인 경우도 이러한 양상을 보일 수 있기 때문에, 이에 대한 근원을 규명하기 위하여 먼저 PL 스펙트럼의 출력의존성을 조사하였다.

Fig. 2는 서로 다른 성장조건을 가지는 자발형성된 InAs QD시료들을 저온 (16 K) 에서 1 ~ 100 mW의 다양한 여기광으로 측정한 출력의존 PL 스펙트럼이다. 시료B와 시료C에서는 low-energy peak과 high-energy peak모두 출력의존성이 거의 없는

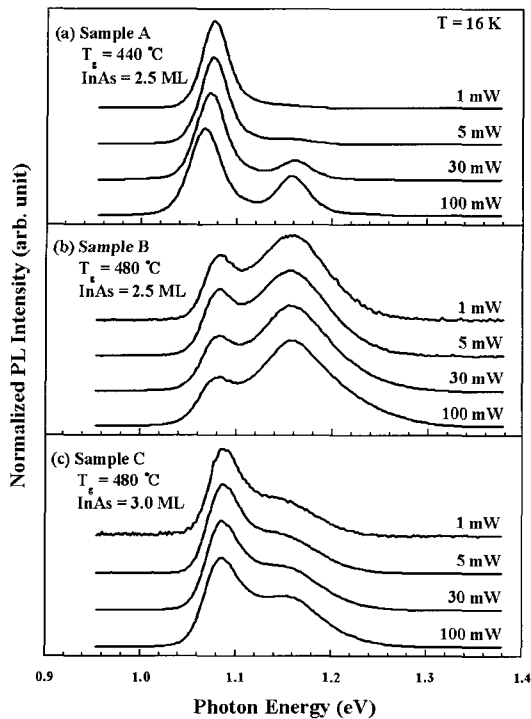


Fig. 2. Excitation power-dependent PL spectra from the InAs QD samples.

반면, 시료A의 high-energy peak은 강한 출력의존성을 보여 주고 있다. 다시 말하면, 출력 광원의 세기가 커질수록 시료B와 시료C의 PL 스펙트럼 모습은 거의 변하지 않는 반면, 시료A의 high-energy peak은 점점 윤곽이 두드러진다. 이것은 이중크기 분포를 가지는 즉, 큰QD와 작은QD 2개의 집단으로 이루어져 있는 시료B와 시료C의 high-energy peak은 주로 작은QD집단의 기저상태 (E_0)의 발광에 기인한 것임에 반하여, 단일크기분포를 가지는 즉, 대부분이 큰QD집단으로만 구성되어 있는 시료A의 high-energy peak은 큰QD집단의 여기상태 (E_1)에서 발광이 지배적이기 때문에 여기광원 의존성이 강하게 나타나는 것으로 해석된다.

QD가 이중크기분포를 가지고 있음을 입증하는 실험결과는 PL 스펙트럼의 온도의존성에서도 찾아볼 수가 있다. Fig. 3은 시료B에서 100 mW 여기 광원 출력으로 16 ~ 300 K 온도 범위의 PL 스펙트럼에서 발취한 온도-PL 에너지 그래프이다. 시료B의 low-energy peak은 Varshni 함수로 알려져 있는 bandgap에 관한 온도의존 실험식 (점선) $E_g(T) = E_g(0) - [aT^2/(T+\beta)]$ 을 잘 따르고 있는 반면, high-energy peak은 온도가 높아짐에 따라 Varshni 곡선에서 낮은 에너지 쪽으로 변위가 일어

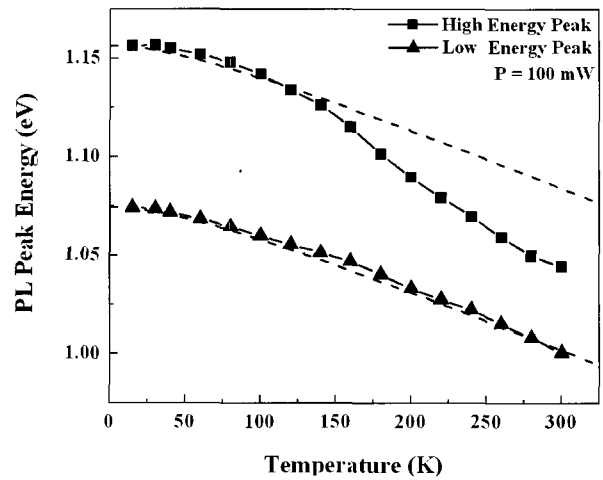


Fig. 3. Temperature-dependence of PL for the B sample measured at an excitation power of 100 mW. The dotted lines show the temperature-dependence of the bulk InAs band gap according to the Varshni law.

나고 있다. 이러한 현상은 이중크기분포에서의 운반자 재분포 (carrier redistribution) 로서 설명될 수가 있는데, 작은QD집단에 구속되어 있는 운반자가 wetting layer (WL) 또는 인접 QD 사이의 투과 (tunneling) 에 의하여 낮은 에너지 준위의 큰QD집단으로 재분포가 일어남으로써 생기는 현상으로 설명될 수가 있다.

Fig. 4는 성장조건 변화에 따라 QD의 이중크기 분포 형성 (formation) 과 수 (numbers) 의 전개를 보여주는 도식적인 그림이다. Fig. 4(a)는 시료 A에서 QD가 성장되는 과정 (growing process) 을 보여주고 있다. 이는 자발형성된 InAs QD의 전형적인 PL 스펙트럼 모습에서도 알 수 있듯이 [참조 Fig. 1(a)] QD형성 시 기판온도 440°C의 조건은 QD의 균일한 크기분포 (uniform size distribution)를 야기시키는 전형적인 성장과정 임을 보여주며, 기판온도 440°C에서 QD가 성장되는 동안에는 In의 탈착 (desorption) 이 거의 일어나지 않는다는 것을 알려준다. 이와는 대조적으로 시료B에서 QD가 성장되는 과정을 보여주고 있는 Fig. 4(b)는 InAs 두께는 2.5 ML로 시료A와 동일하지만, 기판온도를 440에서 480°C로 변화시키면 QD형성 시 균일한 크기분포에서 이중크기분포로 된다는 것을 보여준다. 이는 H. Lee등의 연구그룹에서 발표한 바와 같이 높아진 성장온도로 인해 QD가 형성되는 동안 In의 탈착이 낮은 성장온도 때보다 더욱더 많이 발생하며, 그 결과 큰QDs에서 작은QDs가 형성된 것

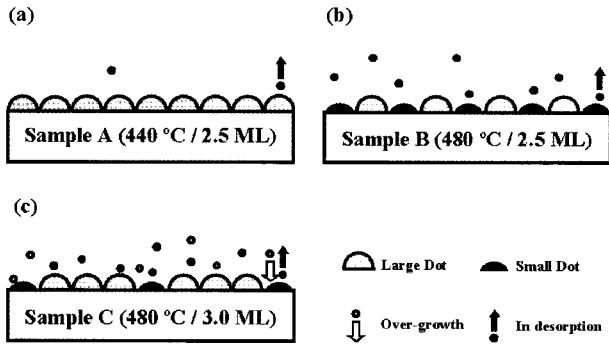


Fig. 4. A schematic diagram for the formation of the bimodal sized QDs, (a) A growth process for the conventionally grown QDs with a size distribution, (b) the formation of bimodal size distribution from one Gaussian distribution of QDs, and (c) the variation of the QDs with the bimodal size distribution.

으로 보인다 [12-15]. 이로 인해 큰QD집단과 작은 QD집단이 서로 공존하는 이중크기분포가 형성되며, PL 스펙트럼에서 high-energy peak이 확연하게 나타나는 것이다 [참조 Fig. 1(b)]. 게다가 QD의 성장 시 InAs 두께의 변화는 또 다른 QD의 분포를 가져온다. Fig. 4(c)는 시료C에서 QD가 성장되는 과정을 보여준다. 기판온도는 시료B와 같은 480 °C이지만 InAs 두께를 2.5에서 3.0 ML로 변화시키면, QD형성 시 큰QD집단의 QD수가 작은QD집단의 QD수보다 더 많아짐을 알려준다. 이는 시료B에서처럼 높아진 성장온도로 인해 큰QD집단과 작은QD집단이 공존하는 이중크기분포가 형성은 되지만, 더욱 더 길어진 성장시간 때문에 큰QD집단의 QD수가 작은QD집단의 QD수보다 더 많아진 것으로 해석된다 [5]. PL 스펙트럼에서 low-energy peak의 세기가 훨씬 더 크게 나타나는 현상이 이를 증명해 준다 [참조 Fig. 1(c)]. 이러한 결과들로 말미암아, 특정 성장조건에서 제작한 자발형성 InAs 양자점에는 일정한 크기의 작은QD집단과 큰 QD집단이 혼재하는 이중크기분포를 가질 수 있으며, InAs의 두께가 증가할 때 QD의 전체적인 이중크기분포는 유지하면서 작은QD집단의 QD수는 감소하고 큰 QD집단의 QD수는 증가하는 방향으로 변천되어 감을 알 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 특정한 성장조건 하에서 이중크기

분포를 가지는 자발형성 InAs 양자점을 제작하였고, 그 특성을 PL을 이용하여 분석하였다. QD 성장 시 기판온도의 증가는 QD의 단일크기분포에서 이중크기분포로의 결과를 초래하였고, InAs 두께 증가는 이중크기분포에서 서로 대립되는 두 QD집단의 QD 수 변화를 가져왔다. 이러한 결과는 온도 및 여기광 출력의존성 PL을 이용하여 증명 하였으며, 그 근원적인 원인은 높은 기판온도 조건에서의 In 탈착현상과 더욱더 길어진 성장시간에 의한 재성장효과에 의한 것으로 추측된다.

참 고 문 헌

- [1] S. I. Jung, J. J. Yoon, H. J. Park, Y. M. Park, M. H. Jeon, J. Y. Leem, C. M. Lee, E. T. Cho, J. I. Lee, J. S. Kim, J. S. Son, J. S. Kim, D. Y. Lee, and I. K. Han, *Physica E* **26**, 100 (2005).
- [2] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, H.-S. Kwack, C. W. Lee, and D. K. Oh, *ETRI, J.* **26**, 475 (2004).
- [3] R. Leon, P. M. Petroff, D. Leonard, and S. Farad, *Science* **267**, 1966 (1995).
- [4] M. Grundmann, O. Stier, and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **52**, 11969 (1995).
- [5] S. J. Lee, S. K. Noh, J. W. Choe, and E. K. Kim, *J. Cryst. Growth* **267**, 405 (2004).
- [6] J. S. Kim, P. W. Yu, J. Y. Leem, J. I. Lee, S. K. Noh, J. S. Kim, G. H. Kim, S. K. Kang, S. I. Ban, S. G. Kim, Y. D. Jang, U. H. Lee, J. S. Yim, and D. Lee, *J. Cryst. Growth* **234**, 105 (2002).
- [7] J. Ibanez, R. Leon, D. T. Vu, S. Chaparro, S. R. Johnson, C. Navarro, and Y. H. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2013 (2001).
- [8] H. L. Wang, D. Ning, and S. L. Feng, *J. Cryst. Growth* **209**, 630 (2000).
- [9] G. Saint-Girons, G. Patriarche, A. Mereuta, and I. Sagnes, *J. Appl. Phys.* **91**, 3859 (2002).
- [10] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux, *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099 (1985).

- [11] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203 (1993).
- [12] H. Lee, R. R. Lowe-Webb, W. Yang, and P. C. Sercel, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2325 (1997).
- [13] W. J. Schaffer, M. D. Lind, S. P. Kowalczyk, and R. W. Grant, *J. Vac. Sci. Technol. B* **1**, 688 (1983).
- [14] C. T. Foxon, B. A. Joyce, *J. Cryst. Growth* **44**, 75 (1978).
- [15] D. Leonard, M. Krishnamurthy, S. Fafard, J. L. Merz, and P. M. Petroff, *J. Vac. Sci. Technol. B* **12**, 1063 (1994).

Optical Properties of Self-assembled InAs Quantum Dots with Bimodal Size Distribution

S. I. Jung^{1,3}, H. Y. Yeo^{1,3}, I. Yun¹, I. K. Han², and J. I. Lee^{3*}

¹*Department of Electrical and Electronic Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749*

²*Nano Devices Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791*

³*Advanced Industrial Metrology Group, Korea Research Institute of Standards and Science, Daejeon 305-340*

(Received February 24, 2006)

We report a photoluminescence (PL) study on the growth process of self-assembled InAs quantum dots (QDs) under the various growth conditions. Distinctive double-peak feature was observed in the PL spectra of the QD samples grown at the relatively high substrate temperature. From the excitation power-dependent PL and the temperature-dependent PL measurements, the double-peak feature is associated with the ground state transitions from InAs QDs with two different size branches. In addition, the variation in the bimodal size distribution of the QD ensembles with different InAs coverage is demonstrated.

Keywords : Quantum dot, InAs, Bimodal size distribution, Photoluminescence

* [E-mail] jilee@kriss.re.kr