

MEE법으로 성장한 InAs/GaAs 양자점의 발광특성

오재원^a · 변혜령^a · 류미이^{a*} · 송진동^b

^a강원대학교 물리학과, 춘천 200-701

^b한국과학기술연구원 광전융합시스템연구단, 서울 136-791

(2013년 1월 19일 받음, 2013년 3월 20일 수정, 2013년 3월 20일 확정)

Migration-enhanced epitaxy 성장한 InAs/GaAs 양자점(quantum dots)의 광학적 특성을 PL (photoluminescence)과 Time-resolved PL 이용하여 분석하였다. InAs 양자점은 In을 9.3초 공급하고 5초 차단한 후 As을 3초, 4초, 6초, 또는 9초 공급하고 5초 차단하는 과정을 3회 반복하여 성장하였다. As을 3초 공급한 시료의 PL 피크는 1,140 nm에서 나타나고, PL 세기는 다른 세 시료에 비해 매우 약하게 나타났다. As 공급시간을 3초에서 증가하였을 때 모든 PL 피크는 1,118 nm로 청색이동하여 나타났으며, PL 세기는 증가하였다. As을 6초 공급한 시료의 PL 세기가 가장 강하게 나타나고, 반치폭(full width at half maximum)도 가장 좁게 나타났다. 이러한 결과는 양자점의 밀도와 균일도(크기변화)로 설명된다. 또한 발광파장에 따른 PL 소멸시간은 PL 피크 근처에서 가장 길게 나타났다.

주제어 : InAs, 양자점, 포토루미네선스, 시간분해 포토루미네선스

I. 서 론

양자점은 수십 나노미터 크기를 가지며 세 방향에서 운반자를 구속하여 상태 밀도(density of state)가 델타 함수(delta function)로 나타난다. 이러한 양자점 구조는 상온에서도 양자점 내의 전자들이 쉽게 양자점을 빠져 나올 수 없기 때문에 이러한 특징을 이용하여 발광 다이오드(light emitting diode, LED), 레이저 다이오드(laser diode, LD), 적외선 검출기, 태양전지 등의 다양한 광전소자의 특성을 개선하기 위하여 연구가 활발히 진행되고 있다 [1-5].

S-K (Stranski-Krastranov) 성장모드는 기판과 성장 물질의 살창 불일치(lattice mismatch)에 의한 응력에너지(misfit strain)를 완화하기 위해 자발적으로 양자점이 형성되는 것을 이용한다. 그러나 자발형성 양자점은 모양, 크기, 균일도, 공간적 밀도 등의 제어에 어려움이 있어 광전소자의 응용에 저해요소로 작용한다. 따라서 응력층(strained layer)을 이용하거나 III/V족 물질의 공급을 조절하여 InAs 양자점의 모양/크기, 균일도, 조밀도 등을 제어하여 성장한 InAs 양자점에 관한 다양한 연구결과가 발표되고 있다 [5-12]. Lee 등 [5]은 In interruption 시간을 조절하여 InAs 양자점의 형성을 제어하여 원하는 파장대(1,200~

1,300 nm)의 양자점을 성장할 수 있음을 보고하였다. 또한 Jo 등 [10]은 InAs 양자점 성장시 As 공급시간을 조절하여 V/III 비를 제어함으로써 InAs 양자점의 균일도 및 크기 제어가 용이하며, 향상된 광학적 특성을 보고하였다. 본 연구에서는 다양한 As 공급시간을 사용하여 MEE (migration-enhanced epitaxy)법으로 성장한 InAs/GaAs 양자점의 광학적 특성을 PL (photoluminescence)과 TRPL (time-resolved PL)을 이용하여 분석하였다.

II. 실험방법

InAs 양자점 시료들은 n-type의 GaAs 기판 위에 V80 MBE 장비를 이용하여 성장하였다. InAs 양자점을 성장하기 전에 580°C에서 GaAs 버퍼층을 성장한 후, 같은 온도에서 5 nm 두께의 Al_{0.3}Ga_{0.7}As 층과 5 nm 두께의 GaAs 층을 5회 반복하여 성장하였다. 그 위에 20 nm 두께의 GaAs 층을 성장한 후, 기판의 온도를 490°C로 낮춰서 InAs 양자점을 MEE법을 이용하여 성장하였다. InAs 양자점을 성장한 후, 25 nm 두께의 GaAs 층을 성장하고 Al_{0.3}Ga_{0.7}As 층과 GaAs 층을 각각 5 nm 두께로 5회 반복하여 성장하였

* [전자우편] myryu@kangwon.ac.kr

다. Fig. 1(a)에 InAs 양자점의 구조를 나타내었다. InAs 양자점은 In을 9.3초 공급하고 5초 차단한 후 As을 일정시간 공급하고 5초 차단해주었으며, 이러한 과정을 3회 반복하여 InAs 양자점을 성장하였다. Fig. 1(b)는 MEE법을 도식화하여 나타내었다. 본 연구에서는 As 공급시간을 3초(AT3), 4초(AT4), 6초(AT6), 또는 9초(AT9)로 조절하여 성장하였다. As 공급시간을 변화하여 성장한 InAs/GaAs 양자점의 발광 특성을 분석하기 위해 PL과 TRPL 측정을 하였으며, 시료의 온도는 헬륨 폐쇄회로 저온 유지 장치(closed-cycle cryostat)를 이용하여 10 K에서 300 K까지 변화시켰다. PL과 TRPL의 여기 광원으로 각각 cw 다이오드 레이저($\lambda=532$ nm)와 피코초 펄스 다이오드 레이저($\lambda=634$ nm, pulse width=50 ps)를 사용하였다. PL과 TRPL 신호는 NIR-PMT (Hamamatsu R5509-73) 검출기를 사용하여 측정하였다.

III. 실험결과 및 논의

InAs/GaAs 양자점 시료들의 저온(10 K)에서 측정된 PL 스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다. AT3를 제외한 모든 시료의 PL 스펙트럼은 1,118 nm에서의 PL 피크와 높은 에너지 영역에 shoulder 피크로 이루어졌으며, AT3의 PL 피크는 1,140 nm에서 나타난다. 또한 AT3와 AT4 시료에서는 PL 피크의 낮은 에너지 영역에 약한 shoulder 피크가 나타난다. Fig. 2에서 보여주듯이 As 공급시간을 3초에서 4초로

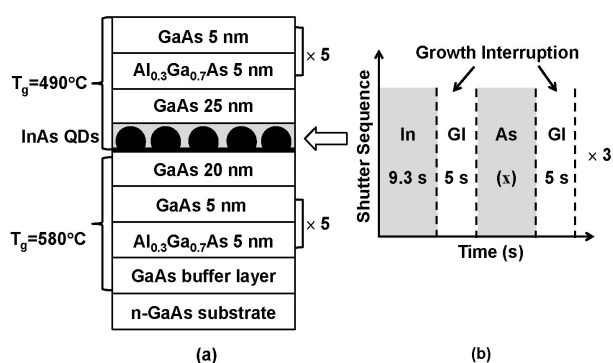


Figure 1. (a) Schematic structures of InAs/GaAs quantum dots. (b) Illustration of a shutter sequence for the growth of InAs QDs by the migration-enhanced epitaxy method.

증가하였을 때 PL 피크는 1,140 nm에서 1,118 nm로 단파장 영역으로 이동하였으며 PL 세기는 약 16배 증가한다. As 공급시간을 6초로 증가하였을 때 PL 피크의 변화 없이 PL 세기는 약간 더 증가하고, As 공급시간을 9초로 증가하였을 때 PL 세기는 급격하게 감소한다. 그러나 AT9의 PL 세기는 AT3 보다 약 5배 강하다.

원자힘 현미경(atomic force microscope, AFM) 이미지를 이용하여 InAs 양자점의 크기, 분포, 밀도 등을 분석하였다(not shown here). As 공급시간을 증가함에 따라 InAs 양자점의 크기 분포는 점차 균일해지고, AT6 시료의 양자점이 다른 시료들에 비해 높은 밀도로 성장되었다. AT3의 평균 양자점 폭은 62.18 ± 20.49 nm로 AT4 (42.89 ± 20.08 nm), AT6 (51.39 ± 8.75 nm), AT9 (42.91 ± 4.76 nm)의 양자점 폭에 비해 훨씬 넓은 폭을 가지는 것을 확인하였다. 또한 AT3, AT4, AT6, AT9의 평균 양자점 높이는 각각 5.52 ± 2.62 nm, 5.34 ± 4.12 nm, 4.41 ± 1.18 nm, 4.65 ± 1.47 nm 이다. 양자점의 에너지 준위는 양자점의 높이와 폭에 따른 상관관계를 가지고 있으며 폭이 넓을수록 바닥상태의 에너지는 장파장 쪽에서 나타난다 [13]. 그러므로 AT3의 PL 피크가 다른 세 시료에 비해 장파장에서 나타난 것은 양자점의 크기(넓은 폭)에 의한 것으로 설명된다. 또한 AT6 시료의 매우 강한 PL 세기는 양자점의 밀도의 증가로 설명할 수 있다.

온도 변화에 따른 InAs/GaAs 양자점 시료들의 PL 피크 에너지를 Fig. 3(a)에 나타내었다. Fig. 3(a)에서 실선은

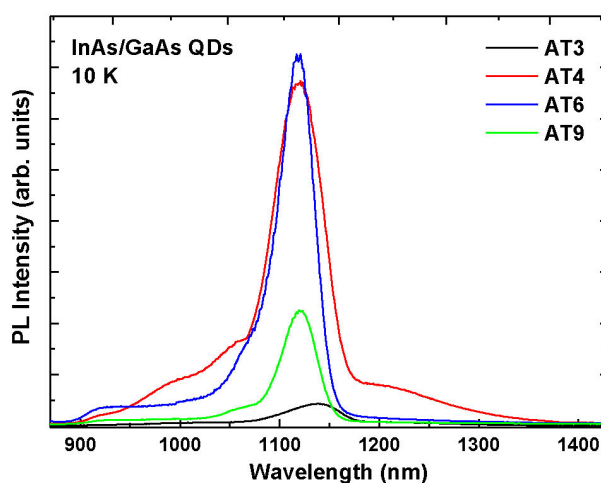


Figure 2. PL spectra of InAs/GaAs QDs measured at 10 K.

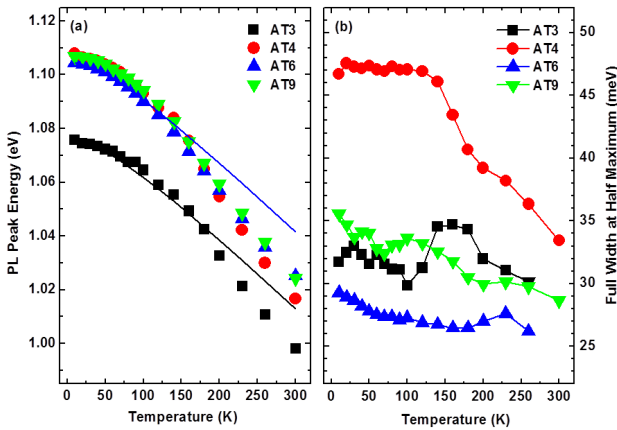


Figure 3. Temperature-dependent (a) PL peak energies and (b) FWHM of InAs/GaAs QDs. The solid curves are the calculated transition energies using Varshni's equation with the parameters of bulk InAs.

AT3와 AT6에 대한 Varshni 방정식 [$E_g(T) = E_g(0) - \alpha T^2 / (\beta + T)$]의 계산 결과를 나타낸다 [14]. Varshni 방정식에서 $E_g(T)$ 는 각 온도에서의 PL 피크 에너지, $E_g(0)$ 은 0 K에서 InAs의 밴드갭 에너지, α 와 β 는 fitting 변수들이다. 계산에 사용한 매개변수(parameter)는 InAs 벌크에 대한 $E_g(0) = 0.417$ eV, $\alpha = 2.76 \times 10^{-4}$ eV/K, $\beta = 93$ K 값을 사용하여 계산한 후, 10 K에서 측정된 PL 피크 에너지와 일치하도록 이동하였다 [15]. 온도가 증가함에 따라 각 시료의 PL 피크는 78 meV (AT3), 91 meV (AT4), 79 meV (AT6), 그리고 83 meV (AT9) 낮은 에너지로 이동하였다. Fig. 3(a)에서 보여주듯이 낮은 온도에서는 PL 피크 에너지 변화가 InAs 벌크와 같은 경향을 보이다가 125 K 이상에서는 InAs 양자점의 PL 피크 에너지가 벌크보다 점차 빠르게 적색이동한다. 그러나 AT3는 175 K까지 벌크 InAs와 같은 경향을 나타낸다. 이것은 AT3가 다른 시료들에 비해 넓은 양자점 폭을 가지기 때문으로 설명된다. 높은 온도(125 K 이상)에서 InAs 벌크에 비해 InAs 양자점의 PL 피크 에너지의 빠른 적색이동은 상대적으로 크기가 작은 양자점의 캐리어가 큰 양자점의 캐리어보다 열적으로 쉽게 장벽 또는 WL (wetting layer)로 여기 되어 양자점 사이의 캐리어 재분배 현상이 일어나기 때문으로 보고되었다 [6,16,17].

Fig. 3(b)는 온도에 따른 PL 피크의 FWHM (full width at half maximum)을 나타내었다. 온도가 증가함에 따라 PL 피크의 FWHM이 감소하는 경향을 보인다. 이것은 온도

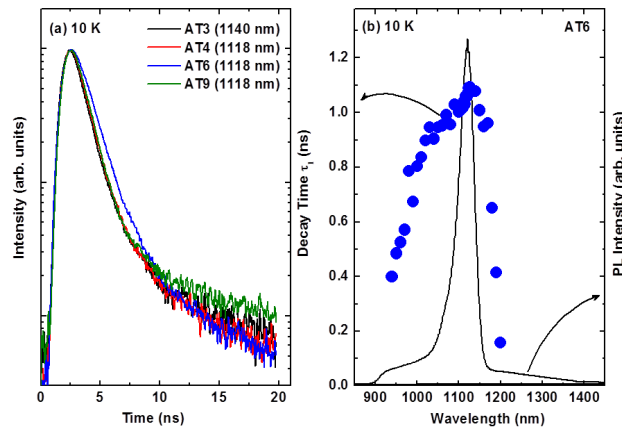


Figure 4. (a) PL decay curves of InAs/GaAs QDs at the PL peak wavelength measured at 10 K. (b) PL decay times (circles) and PL spectrum (solid line) for AT6 as a function of emission wavelength taken at 10 K.

가 증가함에 따라 높은 에너지 영역과 낮은 에너지 영역의 shoulder 피크들의 세기가 상대적으로 증가하기 때문이다 (not shown here). Fig. 3(b)에서 보여주듯이 AT6의 FWHM이 가장 좁게 나타나며 AT4의 FWHM은 가장 넓게 나타난다. 이것은 양자점의 균일도(크기 변화)로 설명된다. AFM 결과에 의하면 AT6의 균일도가 가장 좋게 나타났으며 AT4가 양자점 크기 변화가 가장 크게 나타났다. 온도를 증가함에 따라 양자점의 크기가 균일한 AT6의 경우에는 양자점 사이의 캐리어 재분배 현상이 크게 나타나지 않는다. 그러나 양자점 크기 변화가 큰 AT4는 온도가 증가함에 따라 크기가 작은 양자점의 캐리어가 큰 양자점으로 이동하는 캐리어 재분배 현상이 뚜렷해지기 때문에 FWHM의 감소가 다른 시료들에 비해 크게 나타난다.

Fig. 4(a)는 InAs 양자점의 PL 피크에서 측정된 PL 소멸곡선을 나타낸다. PL 소멸곡선은 빠르게 감소하는 성분과 느리게 감소하는 성분으로 이루어져 있음을 알 수 있다. 그러므로 PL 소멸시간은 이중지수함수인 $I(t) = A_1 \exp(-t/\tau_1) + A_2 \exp(-t/\tau_2)$ 을 이용하여 운반자의 빠른 소멸시간 τ_1 과 느린 소멸시간 τ_2 를 얻었다. Fig. 4(a)에서 보여주듯이 모든 시료의 운반자 수명시간은 빠른 소멸시간 τ_1 의 PL 진폭이 느린 소멸시간 τ_2 보다 우세하게 나타난다. AT3와 AT4의 빠른 소멸시간은 각각 1.09 ns와 1.0 ns이고, AT6와 AT9의 빠른 소멸시간은 각각 1.06 ns, 1.13 ns이다.

10 K에서 측정된 AT6의 발광파장에 따른 빠른 PL 소멸

시간 τ_1 과 PL 스펙트럼을 Fig. 4(b)에 나타내었다. PL 피크에서 가장 긴 소멸시간을 나타내고, PL 피크를 중심으로 발광파장의 증가 또는 감소에 따라 PL 소멸시간이 점차 짧아진다. PL 피크 근처에서 가장 긴 소멸시간은 높은 에너지 상태(상대적으로 크기가 작은 양자점) 또는 WL로부터 운반자 유입(migration)의 증가로 설명할 수 있다. 다른 세 시료의 발광파장에 따른 PL 소멸시간도 유사한 결과를 나타내었다. 발광파장에 따른 PL 소멸시간에 대한 유사한 결과들이 다른 성장조건 또는 구조로 성장한 InAs 양자점에서 보고되었다 [6, 8].

IV. 결 론

온도 변화에 따른 PL과 발광파장에 따른 PL 소멸곡선을 측정하여 As 공급시간을 변화시켜 성장한 InAs/GaAs 양자점의 광학적 특성을 분석하였다. As 공급시간을 3초에서 4초로 증가하였을 때 PL 피크는 1,140 nm에서 1,118 nm로 청색이동하고, PL 세기는 약 16배 증가하였다. As 공급시간을 4초에서 6초로 증가하였을 때 PL 세기는 증가하였으나 PL 피크 에너지는 변화하지 않았다. 그러나 As 공급시간을 9초로 증가하였을 때 PL 피크의 변화 없이 PL 세기는 크게 감소하였다. 이러한 결과는 As 공급시간이 증가함에 따라 InAs 양자점의 크기 분포는 점차 균일해지고 밀도는 증가하기 때문으로 설명된다. 특히 AT6의 가장 좁은 FWHM과 강한 PL 세기는 가장 균일하고 높은 밀도로 성장되었기 때문이다. 발광파장에 따른 PL 소멸시간은 높은 에너지 상태(상대적으로 크기가 작은 양자점) 또는 WL로부터 운반자의 유입으로 PL 피크 근처에서 가장 길게 나타났다. PL과 TRPL 결과에서 보여주듯이 As 공급시간을 조절하여 양자점의 크기, 균일도, 조밀도를 조절함으로써 InAs 양자점의 광학적 특성을 향상할 수 있는 것을 확인하였다.

감사의 글

이 논문은 2010년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(2009-0073699, 2010-0021555). 본 연구는 강원대학교 공동실험실습관의 기기를 이용하여 수행되었음.

참고문헌

- [1] Y. Qiu, D. Uhl, R. Chacon, and R. Q. Yang, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1704 (2003).
- [2] P. Bhattacharya, Z. Mi, J. Yang, D. Basu, and D. Saha, *J. Crystal Growth* **311**, 1625 (2009).
- [3] G. Park, O. B. Shchekin, D. L. Huffaker, and D. G. Deppe, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **13**, 230 (2000).
- [4] J. Kim, S. Ha, C. Yang, J. Lee, S. Park, W. J. Choi, and E. Yoon, *J. Korean Vac. Soc.* **19**, 217 (2010).
- [5] H. J. Lee, M. -Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Korean Vac. Soc.* **18**, 474 (2009).
- [6] H. Y. Kim, M. -Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Lumine.* **132**, 1759 (2012).
- [7] H. J. Lee, M. -Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Appl. Phys.* **108**, 093521 (2010).
- [8] J. W. Oh, S. R. Kwon, M. -Y. Ryu, B. Jo, and J. S. Kim, *J. Korean Vac. Soc.* **20**, 442 (2011).
- [9] V. D. Dasika, J. D. Song, W. J. Choi, N. K. Cho, J. I. Lee, and R. S. Goldman, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 163114 (2009).
- [10] B. Jo, C. -R. Lee, J. S. Kim, K. Pyun, S. K. Noh, J. S. Kim, J. -Y. Leem, and M. -Y. Ryu, *J. Korean Phys. Soc.* **60**, 460 (2012).
- [11] S. R. Kwon, M. -Y. Ryu, and J. D. Song, *J. Korean Vac. Soc.* **21**, 342 (2012).
- [12] N. K. Cho, S. P. Ryu, J. D. Song, W. J. Choi, J. I. Lee, and H. Jeon, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 133104 (2006).
- [13] L. Y. Karachinsky, S. Pellegrini, G. S. Buller, A. S. Shokolnik, N. Y. Gordeev, V. P. Evtikhiev, and V. B. Novikov, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 7 (2004).
- [14] Y. P. Varshni, *Physica* **34**, 149 (1967).
- [15] O. Madelung, *Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, New Series, III/17a* (Springer, Berlin, 1982), p. 297.
- [16] G. G. Tarasov, Yu. I. Mazur, Z. Ya. Zhuchenko, A. Maabdorf, D. Nickel, J. W. Tomm, H. Kissel,

C. Walther, and W. T. Masselink, J. Appl. Phys. **88**, 7162 (2000).

Wu, Y. H. Chen, D. Ding, W. H. Jiang, X. L. Ye, and Z. G. Wang, J. Appl. Phys. **90**, 1973 (2001).

[17] Y. C. Zhang, C. J. Huang, F. Q. Liu, B. Xu, J.

Luminescence Properties of InAs/GaAs Quantum Dots Grown by MEE Method

Jae Won Oh^a, Hye Ryoung Byun^a, Mee-Yi Ryu^{a*}, and Jin Dong Song^b

^a*Department of Physics, Kangwon National University, Chuncheon 200-701*

^b*Center for Opto-Electronic Convergence Systems, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791*

(Received January 19, 2013, Revised March 20, 2013, Accepted March 20, 2013)

The luminescence properties of InAs/GaAs quantum dots (QDs) grown by a migration enhanced epitaxy method have been investigated by using photoluminescence (PL) and time-resolved PL measurements. The MEE method supplies materials in a series of alternate depositions with migration enhancing time between each deposition. After In source was supplied for 9.3 s, the growth was interrupted for 5 s. Subsequently, As source was open for 3 (AT3), 4(AT4), 6 (AT6), or 9 s (AT9), and the growth was interrupted for 5 s again. This growth sequence was repeated 3 times for the growth of InAs QDs. The PL peak of the AT3 was 1,140 nm and the PL intensity was very weak compared with that of the other three samples. The PL peak of all samples except the AT3 sample was 1,118 nm, which is blueshifted from 1,140 nm, and the PL intensity was increased compared to that of the AT3. These results can be explained by the increased QD density and the improved QD uniformity. The AT6 sample showed the strongest PL intensity and the narrowest full width at half maximum. The PL decay time of AT6 increased with increasing emission wavelength from 940 to 1,126 nm, reaching a maximum decay time of 1.09 ns at 1,126 nm, and then decreased as the emission wavelength was increased further.

Keywords : InAs, Quantum dots, Photoluminescence, Time-resolved photoluminescence

* [E-mail] myryu@kangwon.ac.kr