

InAs/GaAs Self-organized Quantum Dots의 전기 · 광학적 특성 연구

A Study on Electrical and Optical Characteristics of InAs/GaAs Self-organized Quantum Dots

김기홍*, 박종도*, 배인호*, 손정식**, 문병연**, 이주인**
(Ki-Hong Kim*, Chong-Do Park *, In-Ho Bae*, Jeong-Sik Son**,
Byeong-Yeon Moon,** Joo-In Lee**)

Abstract

We present a detailed of the interband transitions of InAs/GaAs self-organized quantum dots(QDs) based on surface photovoltage(SPV), photorefectance(PR) and photoluminescence(PL) spectroscopies. At room temperature, interband absorption transitions of QDs have been observed by using SPV spectrum, which clearly exhibits three well-resolved absorption peaks. The absorption line shape is Gaussian-like . Furthermore, the corresponding interband transitions are also observed in PR and PL experiments at 77 K.

Key Words : Surface photovoltage spectroscopy, InAs/GaAs self-organized quantum dots

1. 서 론

최근에 0-차원 이종구조(zero-dimensional hetero-structures)인 InAs/GaAs 양자점(quantum dots)에 대한 전기 및 광학적 성질에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 양자점의 가장 큰 특징은 에너지에 대한 상태밀도가 원자와 비슷하게 델타 함수(δ -function)형태라는 것이며, 양자점을 기본으로 한 광전기적 소자에서는 낮은 문턱전류 밀도, 큰 광학적이득, 높은 양자 효율, 및 고온 안정성 등의 우수함을 예견할 수 있으며, 실제로 실험을 통해 검증되

고 있다[1,2]. 양자점은 수십 나노미터의 양자구조이므로 만들기가 어려웠으나, 최근들어 양자점을 만드는 방법으로 pattern 형성이나 etching 공정을 등을 이용하는 가공법(Frank-van der Merve growth mode)[3]과 성장 물질들의 격자상수 차이에 의해 생기는 strain을 이용하는 자가 성장시키는 방법(self-organized growth mode)[4]등이 있다. 이들 방법중에서 자가 성장시키는 방법에는 양자점을 기판 위에 바로 성장하는 V-W 성장 방법(Volmer-Weber growth mode)과 기판위에 먼저 2차원적 성장이 있는 후 그 위에 3차원 양자점이 형성되는 S-K 성장 방법(Stranski-Krastanow growth mode)이 있다. 이중 S-K 성장방법으로 성장 동안 자가 형성된 3차원 점들은 고순도 양자점 제작의 우수한 방법으로 손상없는 결정구조를 유지하기 때문에 광전기적 성질이 매우 좋다는 장점이 보고되고 있다[5,6]. 그러나 이 경우에 성장된 양자점의 크기가 균일하지 않고, 크기 및 밀도의 조절이 용이하지 않으므로, 양자점 구조들에서의 재결합(recombination)과정과 운

* : 영남대학교 물리학과
(경북 경산시 대동 영남대학교
Fax : 053-814-6141
E-mail : kkh@physics.yeungnam.ac.kr)
** : 경운대학교 안경광학과
*** : 한국표준과학연구원 나노표면그룹
2000년 7월 22일 접수, 2001년 1월 26일 심사완료

반자 운동(carrier dynamics)에 대한 완전한 이해가 요구되며, 엑시톤(exciton)을 포함한 재결합 과정에 대한 실험적 연구가 필요하다. 자가 성장한 InAs/GaAs 양자점의 광학적 성질들을 photoluminescence(PL)[7], photoluminescence excitation (PLE)[8], 그리고 time resolved photoluminescence 등[9]의 방법으로 광범위하게 연구가 진행되고 있으나, 변조분광학이나 흡수분광학으로는 아직 연구가 미흡한 상태이다. Sek 등[10]과 Aigouy 등[11]이 변조분광학인 PR과 ER을 사용하여 양자점의 띠 사이 전이(interband transition)을 연구하였고, Schmidt 등[12]은 시료에 전극을 접촉하는 방법을 사용하여 InAs/GaAs 양자점에 대한 광전압 변화를 연구하여 보고하였다. 특히 양자점의 단면적이 작아서 흡수 스펙트럼 측정이 어렵다. 그래서, 본 연구에서는 표면 광전압(surface photovoltage, SPV) 측정 방법을 이용하여 양자점의 흡수 특성을 조사하고자 한다. SPV방법은 전극 부착이 필요 없고, 실온에서 측정할 수 있는 장점이 있으며, 이 측정 방법은 입사광의 파장 함수에 따라 시료의 광전압 변화를 측정하는 것으로서 띠 간격보다 큰 에너지가 시료에 입사하면, 시료 내에 흡수된 광자들로 인해 생성된 여기 운반자들이 재분포되어 표면 전위(surface potential)의 변화를 일으킬 때의 신호를 관측하는 것이다. 이러한 SPV 방법은 관측된 신호로부터 시료의 띠 간격 에너지, AlGaAs 및 InGaAlP와 같은 삼원 및 사원 화합물의 조성비, 그리고 양자우물과 초격자와 같은 다층 반도체 구조의 광 및 전기적 성질들을 연구하는데 많이 이용되고 있다[13,16]. 따라서 본 연구에서는 자가 형성된 InAs/GaAs 양자점의 광흡수적 성질을 접촉 전극방식인 아닌 비접촉 전극 방법인 SPV 측정방법과 PR 그리고 PL 스펙트럼을 사용하여 양자점의 띠 에너지를 조사하였다 이들 실험방법에 의해 InAs/GaAs 양자점과 wetting layer의 신호를 확인하였다. 다른 측정 기술과 비교하였을 때, 특히 SPV 기술은 상온에서도 QDs의 흡수 성질들의 연구에 매우 감도가 좋으며, 강력한 도구였다. 따라서 InAs/GaAs QDs에 대하여 상온과 77 K에서 측정된 SPV 스펙트럼 결과와 PR과 PL 측정치와 비교 분석하였다.

2. 실험방법

본 연구에 사용한 시료는 molecular beam epitaxy (MBE)를 이용하여 SI-GaAs 기판위에 약 0.5 μm의 GaAs 완충층을 성장하였다. 60초 중단

(interruption)후 InAs QDs은 420 °C에서 0.086 ML/sec로 성장한 후 5 nm GaAs를 덮고 그 위에 50 nm GaAs:Si 도핑층($1 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$)을 성장하였다. 그리고 transmission electron microscope(TEM)측정으로 구한 InAs QDs의 직경과 농도는 각각 16 nm와 $1.3 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 이었다. SPV 측정으로는 chopped light geometry 방법을 사용하였다. 투명한 전도유리(transparent conducting glass ; TCG)를 전면 전극으로 사용하였고, TCG 전극과 시료는 약 30 μm의 간격을 두고 시료의 후면 전극인 구리 시료 걸이에 고정하였다. 그리고 광 여기의 세기를 조절할 수 있는 250 W 할로젠 램프를 광원으로 사용하였으며, 이 광원을 초점거리 0.27 m인 분광기(Spex 270M)에 집속시키고, 분광기를 통해 나온 단색화된 광을 광단속기를 사용하여 주파수를 25 Hz로 고정시킨 후, 시료에 수직으로 입사시켰다. 광 응답(photo-response) 신호는 열린회로전압(open circuit voltage ; V_{oc}) 측정에 의해 얻었으며, 검출된 신호는 규격화된 lock-in amplifier로 증폭하였다. SPV 측정 장치 개략도는 그림 1에 나타내었다.

PR 측정에서는 probe 빔은 250 W 할로젠 램프, 분광기(Spex270)를 사용하였고, 변조 광원으로 Ar 이온 레이저를 사용하였다. 이때 신호는 InGaAs photodiode로 검출하였다. 그리고 PL 측정은 10 K까지 측정할 수 있는 He 순환 방식을 이용하였고, 여기광원으로는 Ar 이온 레이저를 사용하였으며, 집속된 광의 파장에 따른 강도의 측정은 분광기(Spex 750)와 광증배관(PMT)를 사용하였다.

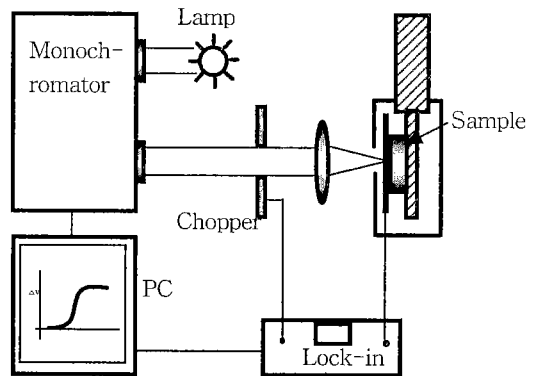


그림 1. 표면 광전압 측정의 개략도.

Fig. 1. Schematic diagram of the surface photovoltage measurement.

3. 결과 및 고찰

자가 성장된 InAs/GaAs 양자점 구조로부터의 SPV 신호는 일정한 조건을 충족시킬 때 흡수 형태를 따르는 SPV 스펙트럼을 볼 수 있다. 이는 다음과 같은 성질로 설명할 수 있다. 두께 L 층을 통과하는 광 세기가 I_0 일 때, 흡수 세기는 $I_0(1 - e^{-\alpha L})$ 이며, 여기서 α 는 이층의 흡수계수이다. 광의 일부는 Δn 의 농도인 광 운반자를 생성할 것이며, 이는 $I_0(1 - e^{-\alpha L})\tau/\hbar\omega$ 와 같을 것이다, 여기서 τ 는 운반자 수명(lifetime)이다. 만일 $\alpha L \ll 1$ 이며, $\Delta n = (I_0 L / \hbar\omega)\tau\alpha$ 이다. 이 층에 전기장이 존재할 때, 광으로 인하여 생성된 전자와 정공들은 배열될 것이고, 광 전압은 $e\Delta n/C$ 즉, $(I_0 e L / \hbar\omega C)\tau\alpha$ 와 같이 된다. 여기서 C 는 이층의 capacitance이다. 그러므로, SPV 스펙트럼은 α 에 비례하는 흡수 그래프에 따르는 것이다[16].

실온에서 자가 성장한 InAs/GaAs 양자점의 SPV 스펙트럼을 그림 2에 나타내었다.

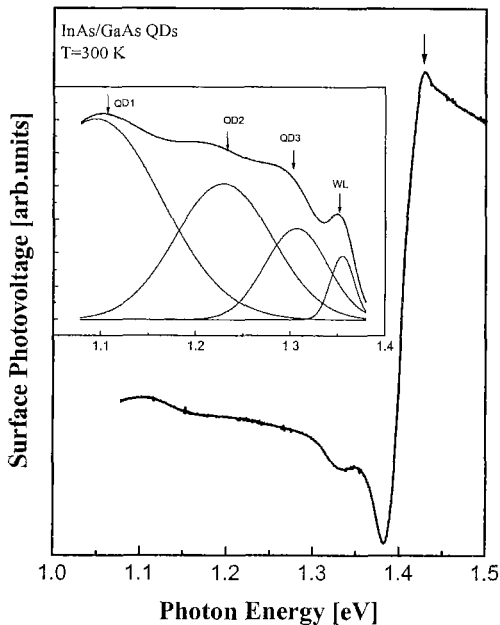


그림 2. 실온에서의 InAs/GaAs 양자점의 SPV 스펙트럼.

Fig. 2. A SPV spectrum of InAs/GaAs QDs at room temperature.

SPV 스펙트럼에서 고 에너지(1.42 eV)쪽의 매우 가파른 신호는 GaAs 층의 밴드 가장자리 흡수에 기인한 것이다. 그리고 GaAs 신호 아래쪽에 4개의 피크가 보이는데 이는 InAs과 관계된 흡수 피크로 여겨진다. 왜냐하면 GaAs 층만 성장한 시료에서는 이들 피크가 나타나지 않기 때문이다[12]. 1.0-1.4 eV 사이의 피크들을 자세히 관찰하기 위해 그림 2에 삽입하여 나타내었다. 4개의 잘 분리된 피크가 나타나며, 이들 피크점을 확인하기 위하여 Gaussian 피팅한 결과와 잘 일치하였다. 피팅으로 부터 얻은 이 피크의 에너지와 반치폭(full width at half maximum, FWHM)은 각각 1.11 eV, 156 meV, 1.22 eV, 121 meV, 1.31 eV, 68 meV 그리고 1.36 eV, 29 meV 이었다. Schmidt 등[12]은 1.36 eV 아래의 흡수 피크는 양자점의 바닥상태(ground state)와 들뜬상태(exited state) 전이에 기인한 피크이고, 1.36 eV은 InAs wetting layer에 기인한 피크라고 보고하고 있고, Petroff 등[17]은 InAs coverage와 양자점들의 크기들이 증가할수록 양자점 흡수피크가 증가하고 낮은 에너지 쪽으로 이동하며, wetting layer 피크는 고 에너지쪽으로 이동한다고 보고하였다. 양자점 흡수피크의 낮은 에너지로의 이동은 양자점에 의한 양자가둠 효과로 양자점의 크기가 상대적으로 커짐에 의해서 양자점 내부에 존재하는 에너지 상태가 낮아지기 때문이다. 그리고 높은 밀도와 양자점의 크기가 증가할수록 wetting layer의 흡수 피크가 줄어드는 것은 높은 밀도 지역에서 양자점들에 의해 캐리어 포획 비율이 증가하기 때문이라고 할 수 있다. 그리고 양자점 피크보다 wetting layer의 피크가 큰 에너지를 가지는 것은 Stranski-Kranstanov 모드 성장방법으로 자가 형성되는 양자점의 경우, 3차원 양자점이 형성되기 전에 1.6-1.7 monolayer 두께의 아주 얇은 2차원적인 wetting layer가 형성된다[18]. 이러한 wetting layer는 아주 얇기 때문에 큰 구속(confinement)에너지를 가지므로 양자점보다 큰 에너지를 갖는 것이다.

그리고 자가 성장한 InAs/GaAs 양자점과 wetting layer의 신호를 다른 실험 방법으로 측정된 측정치와 비교할 목적으로 77 K에서 측정된 SPV, PR 및 PL 스펙트럼을 그림 3과 4에 나타내었다.

77 K에서 SPV로 측정된 InAs/GaAs QDs. 전이 에너지 신호가 300 K보다 broader한 것을 볼 수 있다. 이는 broadening mechanism으로 양자점 크기의 범위이며, 이는 온도에 거의 관계가 없다[19]. 그러나 온도가 내려갈수록 양자점의 shear strain이 증가하므로 무거운 정공 퍼텐셜의 deepening을 가져오며,

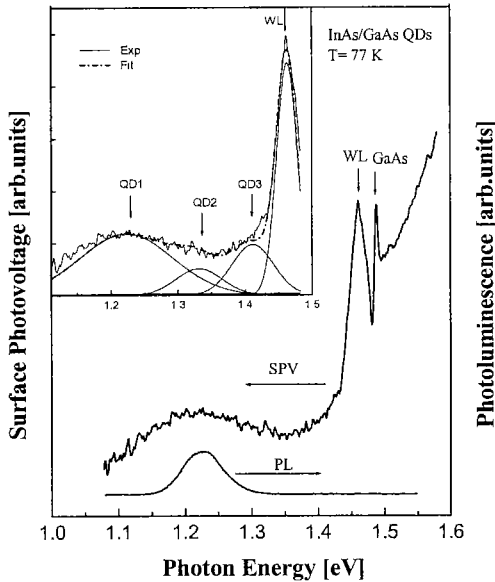


그림 3. 77K에서 InAs/GaAs 양자점의 SPV 스펙트럼.

Fig. 3. A SPV spectrum and a PL spectrum of InAs/GaAs QDs at 77K.

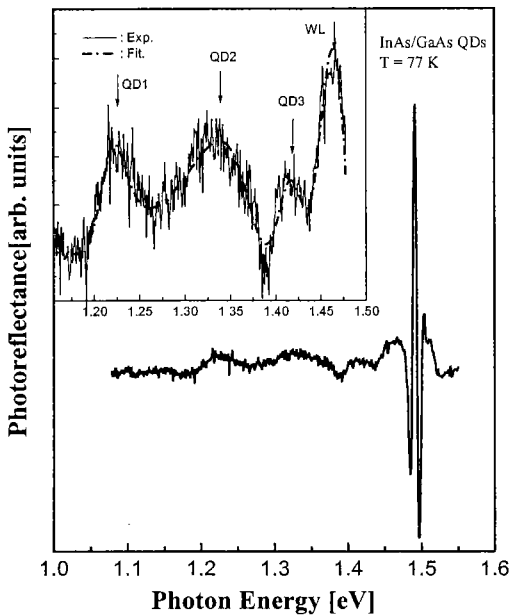


그림 4. 77K에서 InAs/GaAs 양자점의 PR 스펙트럼.

Fig. 4. A PR spectrum of InAs/GaAs QDs at 77K.

구속(confinement)에너지를 증가시킨다. 양자점 크기가 넓어질수록 특히, 낮은 에너지 전이에서 에너지의 broadening은 크게 관찰될 것이다. 저온으로 갈수록 broadening의 유사한 증가는, InAs/GaAs 양자점의 광전류(photocurrent)와 PL 스펙트럼 측정에서도 보고되고 있다[20,21].

그리고 상온에서 잘 관찰되지 않던 InAs/GaAs 양자점의 PR 신호가 77 K에서 잘 분리되어 보였으며, 특히 낮은 에너지 쪽의 전이 에너지가 관측되었다. 양자점의 PR 신호를 분석하기 위하여서는 흡수라인 형태인 유전함수(dielectric function)의 허수부분(imaginary part)이 필요하다. SPV 스펙트럼에서 잘 알려진데로, 유전함수의 형태(profile)는 Gaussian-like이다. 유전함수의 실수부분은 Kramers-Kronig 관계식의 사용으로 유도할 수 있다[22,23]. Sek 등 [10]과 Aigouy 등[11]의 분석방법과 같이 Gaussian 라인 형태의 1차도함수로 이 실험치를 피팅하여 그림 4에 나타내었다. SPV, PR 그리고 PL로 측정된 측정치를 Gaussian 피팅한 InAs/GaAs QDs 전이 에너지 값들은 표 1에 나타내어 비교하였다.

표 1. 300 K와 77 K에서 관찰된 전이 에너지.

Table 1. Summary of the transition energies observed at 300 and 77 K.

Transition	Transition energy (eV)			
	SPV (300 K)	SPV (77 K)	PR (77 K)	PL (77 K)
QD1	1.114	1.223	1.224	1.216
QD2	1.223	1.332	1.336	
QD3	1.312	1.409	1.414	
WL	1.358	1.460	1.464	

4. 결론

SPV, PR 그리고 PL 스펙트럼을 사용하여 자가 성장한 InAs/GaAs 양자점의 띠 사이 전이 에너지를 조사하였다. 상온에서 SPV 측정으로 양자점과 wetting layer의 흡수에 기인한 띠 사이 전이를 볼 수 있었고, 흡수 스펙트럼은 Gaussian line 형태를 가졌다. 그리고 양자점의 전이 에너지와 wetting layer 전이 에너지는 77K에서 측정된 PR 과 PL 측정으로 SPV 값과 비교 할 수 있었다.

참고 문헌

- [1] J. Y. Marzin, J. M. Gerard, A. Lzael, D. Barrier, and G. Bastard, Phys. Rev. Lett. 73, 716 (1994).
- [2] Y. Arakawa and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. 40, 939 (1982).
- [3] Y. Nagamunem, Appl. Phys. Lett. 64, 2495 (1994).
- [4] D. J. Eaglesham, Phys. Rev. Lett. 64, 1943 (1990).
- [5] Y. Arakawa and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. 40, 939 (1982).
- [6] H. Sakaki, Jpn. J. Appl. Phys. 28, L314 (1989).
- [7] L. Brusaferrri, S. Sanguinetti, E. Grilli, M. Guzzi, and A. Bignazzi, Appl. Phys. Lett. 69, 3354 (1996).
- [8] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, and Z. I. Alferov, Appl. Phys. Lett. 68, 361 (1996).
- [9] S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Lean, P. M. Petroff, and J. L. Merz, Phys. Rev. B54, 11548 (1996).
- [10] G. Sek, J. Misiewicz, K. Ryczko, M. Kubisa, F. Heinrichsdorff, O. Stier, and D. Bimberg, Solid State Commun. 110, 657 (1999).
- [11] L. Aigouy, T. Holden, and F. H. Pollak, Appl. Phys. Lett. 70, 3329 (1997).
- [12] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, J. Garcia, and O. M. Petroff, Appl. Phys. Lett. 70, 1727 (1997).
- [13] L. Aigouy, F.H. Pollak, J. Petruzzello, and K. Shahzad, Solid State Commun. 102, 877 (1997).
- [14] W. Liu, D. Jiang, and Y. Zhang, J. Appl. Phys. 77, 4564 (1995).
- [15] D. Gal, Y. Mastai, and Hodes, J. Appl. Phys. 86, 5573 (1999).
- [16] N. Ashkenasy, M. Leibovitch, Y. Rosenwaks, and Y. Shapira, J. Appl. Phys. 86, 6902 (1999).
- [17] P.M. Petroff, Jpn. J. Appl. Phys. 36, 4068 (1997).
- [18] D. Bimberg, Jpn. J. Appl. Phys. 35, 1311 (1996).
- [19] G. L. Rowland, T. J. C. Hosea, S. Malik, D. Childs, and R. Murray, Appl. Phys. Lett. 73, 3268 (1998).
- [20] T. Shima, E. Yamamoto, S. Kuniyoshi, K. Kudo, K. Tanaka, A. Obara, Applied Surface Science 107, 233 (1996).
- [21] Y. T. Dai, J. C. Fan, Y. F. Chen, Y. F. Chen, S. C. Lee and H. H. Lin, J. Appl. Phys. 82, 4489 (1997).
- [22] 김근형, 김동렬, 김종수, 배인호, 전기전자재료학회지, 10, 692 (1997).
- [23] 김근형, 김인수, 이정열, 이동건, 배인호, 전기전자재료학회지, 10, 555 (1997).