

서론

레이저 광에 의해 순간 여기된 반도체에서 발생하는 동역학적 이완과정은 크게 결맞는 상태(Coherent regime, ≤ 200 fs), 비열적 상태(Non-thermal regime, ≤ 2 ps), 뜨거운-여기자 상태(Hot-Carrier regime, $\sim 1-100$ ps), 열적 평형상태(Isothermal regime, ≥ 100 ps)로 구분된다. 여기서 결맞는 상태는 반도체 여기상태에 레이저의 결맞음성이 유지 또는 감쇠과정을 겪는 상태를 말하며, 실제 및 가상의 여기상태를 포함하여 반도체 양자역학과 관련된 근본적인 다양한 현상들을 포함하고 있어 흥미로우며, 이에 대한 연구는 펨토초 레이저 출현과 함께 본격적으로 시작되었다. 본 글에서는 근본적인 물리현상에 대한 탐구로 반도체 결맞는 상태에서 발생하는 실제 및 가상의 여기

에서는 전자와 광학적 포논과의 작용, 뜨거운-여기자 상태에서는 여기자와 음향 및 광학적 포논과의 작용이 알려져 있기 때문에, 반도체에서 에너지(위상) 이완과정에서 발생하는 포논 동역학에 관한 연구는 매우 중요하다. 본문에서는 이러한 시분해 라만 분광학의 한 예로써 펨토초 펄스를 이용한 결맞는 포논의 일반적인 특성을 먼저 다루고, 최근 주요한 반도체에서 관측된 결맞는 포논의 다양한 특성들을 살펴보고자 한다.

1. 실제 및 가상 엑시톤 진폭의 양자간섭 현상

실제 및 가상 엑시톤 진폭의 양자간섭 현상 ω_0 의 공명주파수를 지닌 단진자 계에 비공명 주파수 ω 를 지닌 힘을 순간적으로 가한다고 하자 (그림 1). 이때 단진자 운동의 특

특집 ■ 펨토 과학 I

반도체에서의 펨토초 분광학

임용식, 김대식*

상태 사이에 동역학적 상호작용을 GaAs/AlGaAs 양자우물 반도체에서 시분해 분광법으로 규명한 사례를 설명한다⁽¹⁾. 또 위의 결맞는 상태 하에서 대표적인 산란으로 정공과 광학적 포논과의 작용이 알려져 있고, 비열적 상태 하

성은 다음의 두 가지로 요약되어진다: (1) 비공명 주파수이므로 운동의 진폭이 작다 (2) 힘이 사라지면서 운동도 함께 사라진다. 만약 힘이 공명 주파수와 비공명 주파수가 같이 존재한다면 두 개의 운동 사이의 맥놀이를 관측할 수

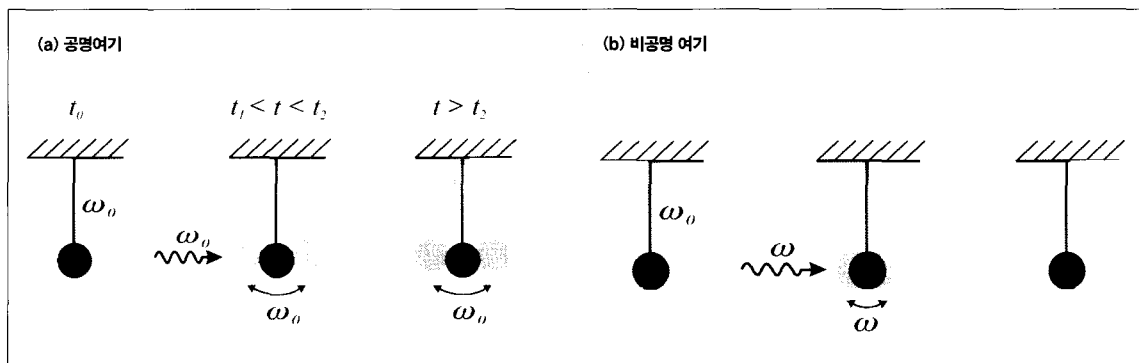


그림 1. 공명여기(a)와 달리 비공명여기 (b)의 경우 펄스를 가해주는 동안만 단진자가 진동한다.

* 건국대학교 신소재과학부 광전자물리전공

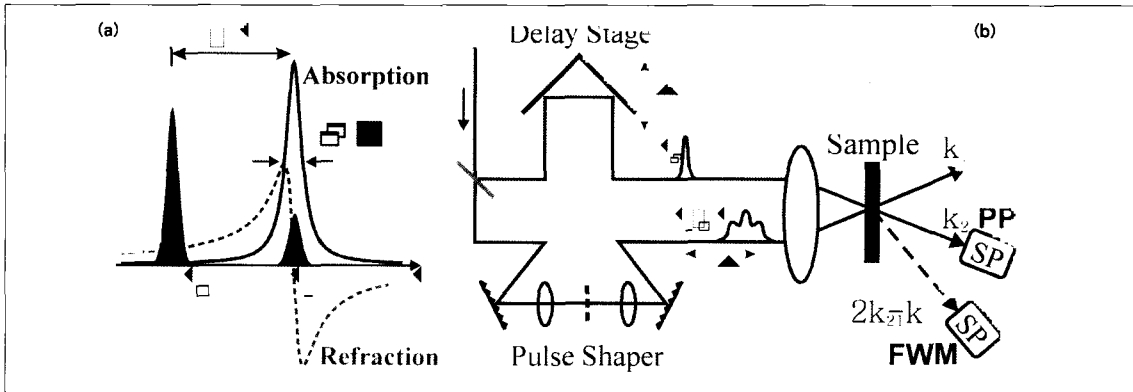
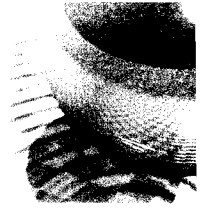


그림 2. 가상-실제 간섭 현상의 관측을 위한 이색광 펄스/ 펄스 사파혼합 실험 원리

있을 것이며 힘과 함께 사라지는 “가상여기” 상태에 대하여 좀더 이해를 깊게 할 수 있을 것이다.

본 연구에서는 반도체 양자우물계의 엑시톤 계에서 가상 상태-실제 상태 사이의 맥놀이를 관측하였다. 펨토초 펄스 모양 조절에 의하여(그림 2) 가상여기 상태와 실제 상태를 여기시켜, 사파 혼합 신호와 pump-probe(여기-탐사) 신호를 관측하였다. 이때 실제 상태를 여기시키는 공명 주파수 성분보다 가상 상태를 여기시키는 비공명 주파수의 세기가 훨씬 더 커야 좋은 맥놀이가 관측된다. 이것은 다음과 같은 간단한 방정식을 보면 이해할 수 있다²⁾.

$$C(t) \propto \frac{E_0 e^{i\omega t}}{\omega_0 - \omega - i\gamma} \quad (1)$$

이때 $E_0 e^{i\omega t}$ 는 걸어준 힘이며 γ 는 damping constant, $C(t)$ 는 진폭이다. 힘의 세기가 같을 때면 공명일 때의 진폭이 비공명일 때의 진폭보다 $|\omega_0 - \omega|/\gamma$ 배만큼 큰데 이를

상쇄하기 위해서는 가상상태의 힘을 그만큼 세게 해야 하는 것이다.

그림 3에서는 펄스의 모양과 사파 혼합 신호를 비교하였다. 펄스의 모양은 점선으로 나타나 있으며 사파혼합은 실선으로, 그리고 가상 상태를 여기시키는 주파수 성분 I_1 과 실제 상태를 여기시키는 주파수 성분 I_0 성분의 비가 나타나 있다. 그림에서 보는 바와 같이 가상상태를 여기시키는 주파수 성분의 세기가 실제 상태를 여기시키는 주파수 성분보다 40배 정도가 클 때 가장 좋은 맥놀이가 관측된다. 이것이 말해주는 것은 레이저의 비공명 성분의 세기가 이처럼 커야 공명 성분과 비공명 성분이 여기시키는 가상 상태와 실제 상태의 진폭이 대략 같아지는 것을 의미한다. 실제로 여기되는 엑시톤의 갯수(population)도 시간에 따라 가상-실제 맥놀이를 일으키는데, 이를 여기-탐사법을 이용하여 관측할 수 있다(그림 4). 재미있는 것은 펄스 모양과 사파혼합, 여기-탐사의 진동 사이에 약 90도 정도의

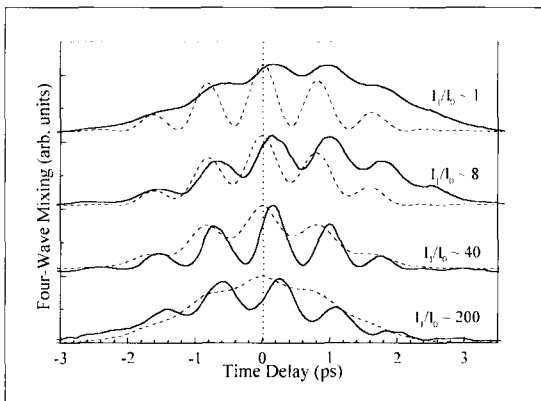


그림 3. 사파혼합 실험 결과

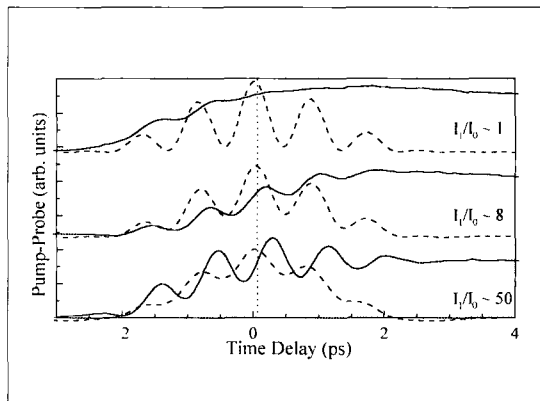


그림 4. 여기-탐사 실험 결과

반도체에서의 펄스초 분광학

표 1. CW Raman 실험과 펄스초 결맞는 라만실험의 장·단점 비교

| CW Raman 실험 | |
|-------------|--|
| 장점 | <ul style="list-style-type: none"> · 진동의 주파수(에너지) 추출 용이 · 다양한 시료 선택성 · 여기광의 다양한 파장 선택성 |
| 단점 | <ul style="list-style-type: none"> · 시간영역에서 진동 직접 관측 · 격자 진동의 정확한 위상정보 및 이완시간 추출 가능 · 증폭효과에 의한 큰 신호세기 · 격자 진동의 선택적 제어 가능 · 소형화 가능 |
| 장점 | <ul style="list-style-type: none"> · 격자 진동의 위상정보가 없다 · 계측장비의 분해능에 큰 의존성 · 고 분해능 장치일 경우 큰 규모 · 고가 |
| 단점 | <ul style="list-style-type: none"> · 펄스폭에 의해 제한되는 진동 주기 · 펄스당 에너지가 클수록 유리 |

위상차가 난다는 것이다. 이는 방정식 (1)에서 바로 이해할 수 있다.

우리의 실험 방법은 새로운 결맞는 조절 방법을 제시하며 현재 원자계에서 이 결과를 다시 관측하는 노력이 진행되고 있다.

2. 반도체 결맞는 포논 분광학

반도체 시분해 라만 분광학은 70년 초 피코초 펄스의 개발과 함께 시작되었지만, 펄스폭이 반도체 격자의 진동 주기보다 컸기 때문에 세세한 진동을 관측할 수 없었고 단지 진동의 이완(감쇠)시간만을 추출할 수 있었다. 1990년도 펄스초 고체레이저의 출현과 함께 짧은 펄스폭을 이용하여, 시료로부터 시간영역에서 직접적으로 생성한 격자 진동을 관측할 수 있게 되었다. 이와 같은 새로운 펄스초 결맞는 라만분광법은 종래의 연속광 라만(CW Raman) 실험과는 다른 독특한 특성을 갖는 데, 이들 간의 각기

장·단점은 표 1과 같다.

최근 펄스초 레이저 기술 진보로 다양한 원자, 분자 및 고체에서 결맞는 전자의 여기나 결맞는 진동상태를 발생시키고, 이를 탐색하고 제어할 수도 있게 되었다. 펄스폭이 이러한 진동주기보다 짧을 때, 그 진동모드를 순간적으로 여기시킬 수 있다. 최근에는 결맞는 포논으로부터 테라와 발생과 결맞는 포논의 제어에 관한 연구가 수행되고 있으며, 이와 같은 결맞는 진동현상을 이용하여 펄스초 X 선을 효과적으로 개폐시키는 스위칭 기능 소자로서 제안되기도 하였다.

한편 결맞는 라만의 발생기저에 대한 모델로서 다음과 같이 세 가지 기저들이 제시되었다.

- 1) 순간 유도 라만 산란(Impulsive Stimulated Raman Scattering; ISRS)
- 2) 결맞는 포논 이동 여기(Displacive Excitation of Coherent Phonon; DECP)
- 3) 표면 전기장 가림(Ultrafast Screening of Surface Space-Charge Field; Screening)

1992년 Kutt 등은 Impulsive Raman 산란 방법을 이용하여 Ge 반도체 단결정에서 결맞는 라만 진동모드 신호가 실린 변조된 굴절을 신호를 최초로 얻었다³⁾. 주로 투명한 매질에서 발견되는 이러한 ISRS 기저와는 달리, 거의 같은 시기에 주로 흡수체에서 발견되는 DECP 기저에 관한 보고가 있었다. 이 DECP 기저는 반도체, 고온초전도체, 금속 등과 같이 결정구조에서 광 펄스의 흡수로 급격한 전하밀도의 변화와 이에 따른 급격한 온도 상승에 의하여 유도되는 핵간 거리의 변화에 의해 발생함이 알려졌다. 특히 1992년 Zeiger 등은 Bi, Sb, Tl_2O_3 , 고온 초전도체 등에서 A₁대칭 진동모드의 선택적인 여기를 설명하기 위하여 DECP 기저를 제안하였다⁴⁾. 이 DECP 기저는 비단결정

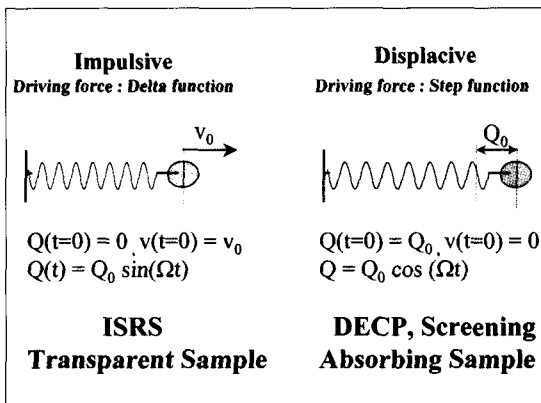


그림 5. 결맞는 포논 발생기저들

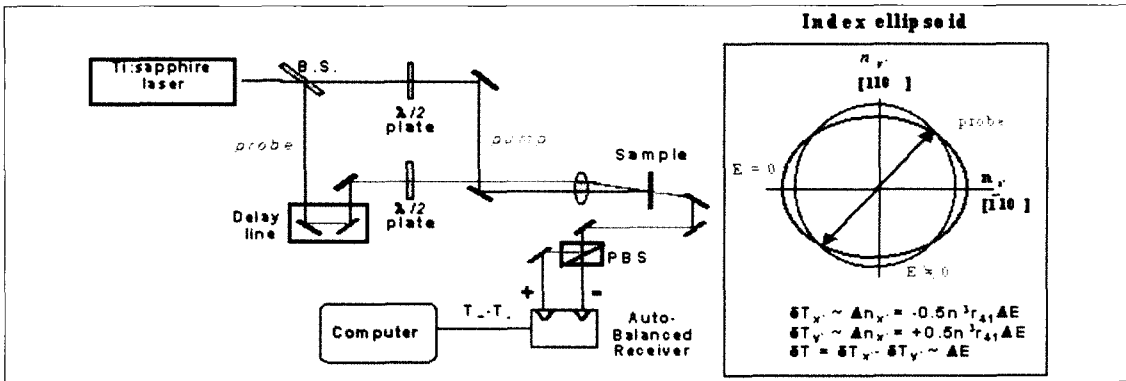
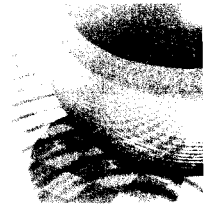


그림 6. 투과형 전기광학적 샘플링 측정 방법과 반도체 내 전기광학적 효과

체 뿐만 아니라 단일분자(I_2 , NaI 등)나 중합체(예로 11-cis retinal 분자에서 cis-trans configuration change) 등에서 흡수나 형광신호를 시분해 함으로써, 광 흡수과정으로 나타나는 Frank-Condon 효과로 파생되는 구조체의 변화를 추적하는 데 유효하다^{5, 6)}. 또 앞의 기저들과는 달리, 1990년 Cho 등은 GaAs 반도체로부터 미세한 반사율을 여기-탐사법으로 측정하여 새로운 Screening 기저를 제시하였다. 즉 GaAs 반도체의 에너지 띠 부근의 광 에너지 흡수에 의해 급격한 전하가 시료 표면에 형성되고, 이에 따라 표면부근의 공간-전하 전기장의 변화로 자유로워진 광학적 종모드(LO)가 결맞는 포논으로 나타남을 제안하였다⁷⁾. 그림 5에서와 같이 ISRS 기저에서는 격자진동이 여기광 펄스와 동시에 sine 함수 형태로 고유진동을 보이는 반면에, DECP 기저나 Screen 기저에서는 격자의 이동이 먼저 일어난 후에, 고유진동수로 진동하기 시작하는 cosine 함수 형태를 갖는다.

결정구조물에서 결맞는 포논의 발생기저에 대한 논란은 최근까지 해결되지 지속되었다. 여기광 펄스에 흡수매질인 Sb 반금속매질에서 관측된 결맞는 포논의 발생기저는 DECP 기저일 것이라는 예상과는 달리, ISRS 기저임이 보고되었다⁸⁾. 최근에 GaAs/AlGaAs MQW 양자구조물에서 수행된 결맞는 포논 발생 실험을 통해 논란이 되고 있는 발생기저들을 통합한 모델을 새로이 제시되었다⁹⁾. 즉 여기광의 에너지가 시료의 에너지 띠보다 작을 경우에는 결맞는 포논의 발생기저가 ISRS 기저이고, 여기광의 에너지가 시료의 에너지 띠보다 클 경우에는 그 발생기저가 DECP 기저와 Screening 기저에 각각 의존하며, 이때 이들 기저들은 여기광 에너지에 크게 의존함이 나타났다.

여기서는 펄스의 에너지가 반도체 시료의 에너지 띠보다 낮은 경우에 나타나는 순간 유도라만 진동을 이용하여, 필자의 연구를 중심으로 다양한 반도체 시료에서 여기자와 포논과의 작용에 관한 다양한 동역학을 탐구할 수 있는 결맞는 라만 분광실험들에 관하여 기술하기로 한다. 이와 같은 실험방법은 그 동안 반도체의 에너지 띠 근처에 집중적으로 몰두되었던 반도체 결맞는 포논 연구가 시료의 에너지 띠 구조에 의한 제약성으로부터 벗어나 연속광 라만 실험과 같이 보다 자유롭게 다양한 시료에 걸쳐 직접적인 라만 동역학을 연구할 수 있는 기회를 제공한다.

3. 에너지 띠보다 낮은 광자에너지의 펨토초 펄스를 이용한 결맞는 포논진동

(1) 측정 방법

다양한 극성반도체에서 결맞는 포논을 관찰하기 위해서 일반적으로 그림 6과 같이 여기-탐사법이 사용되고 있다. 이는 기본적으로 기준 여기광에 대해 시료에 의해 변화된 탐사광의 반사율 또는 투과율을 직접 측정하는 데, 이의 변형으로 시료 내 격자운동에 따라 수반되는 전기광학적 효과를 이용하여 탐사광의 정상광선과 이상광선 사이의 편광차이를 측정하여 격자운동을 조사하는 반사형(또는 투과형) 전기광학 샘플링 방법이 있다. 여기서 이와 같은 전기광학적 효과를 이용하는 방법은 편광변화에 매우 민감한 측정기술이며, 이에 따른 라만신호 추출은 그림 6에서와 같이 2개의 동일한 광 검출기의 신호차이로 나타나

반도체에서의 펄스 분광학

는 반사를 변화를 통해 얻어진다. 이때 신호 대 잡음비를 키우기 위해 신호 획득시간을 가능한 길게 하며, 위 방법을 통해 얻어지는 반사율 변화의 최대 신호 대 잡음비는 보통 10^6 이다.

(2) ZnSe 결정에서의 결맞는 광학적 포논진동

광자에너지가 ZnSe 결정의 에너지 띠보다 훨씬 낮을 때, 여기자의 발생이 결맞는 포논의 여기와 직접적인 연관성은 없다. 이 경우에 대개 가능한 발생기저로는 양자우물 구조에서 에너지 띠 근처의 여기나 포논-플라톤 작용에서와 같이 에너지 띠보다 낮은 에너지 광자를 이용한 반도체 실험 경우에 가능한 순간 유도 라만산란에 비유한다. 순간 유도 라만산란에서는 선폭이 넓은 펄스초 펄스가 입사광과 출력광으로 사용되고 라만신호를 담은 출력광이 여기 증폭되기 때문에, 라만텐서를 둘러싸는 입사광과 출력광의 편광은 동일하다.

ZnSe 결정의 (001)면에 대해 전방 또는 후방 산란구조에서 허용된 라만텐서 R_A 는 2×2 비대각행렬로 표현되며, 영의 값이 아닌 행렬요소 a_{LO} 는 [001] 방향으로 정의된 변형포텐셜 라만편극율이다. 또 여기광 편광각도 φ 를 ZnSe 결정의 [001] 방향축을 기준으로 하면, 입사광과 출력광

의 편광은 $e_s = e_i = (\cos\varphi, \sin\varphi)$ 로 주어진다. 순간 유도 라만산란 기저에서 결맞는 LO 포논의 산란 진폭은 다음과 같이 여기광의 편광각의 함수로 주어진다.

$$S \propto e_s \cdot R_A \cdot e_i \propto a_{LO} \times \sin(2\varphi) \quad (4)$$

그림 7a은 ZnSe 결정에서 관측된 여러 여기광 편광변화에 따른 시분해 투과율 변화를 나타낸다. 여기광에 의해 시작된 결맞는 LO 포논 진동은 결정 내에 굴절율을 변조시키고, 이는 뒤 따라오는 탐사광의 투과율 변화를 유도한다. 그림 7b에서처럼 포논 진동진폭은 식 (4)와 같이 $\varphi = -45^\circ$ 일 때와 $\varphi = 45^\circ$ 일 때에 π 의 위상차와 함께 $\sin(2\varphi)$ 의 의존성을 보인다. 이와 같은 특성은 결맞는 LO 포논진동의 발생기저가 순간 유도 라만산란임을 나타낸다. 아울러 유도 라만과정에서 격자진동의 추진력은 여기광 세기에 비례하기 때문에 포논진폭이 여기광의 출력에 선형적으로 비례한다는 사실은 또한 유도 라만산란 발생기저로 설명된다.

결맞는 포논진동과 일반 라만신호를 비교하기 위해, 아르곤 레이저(514.5nm)를 이용한 후방산란구조로 ZnSe 결정의 연속광 라만실험을 하였다. 그림 7c는 그림 7a와 같은 결맞는 포논진동을 푸리에 변환하여 얻은 분광선과

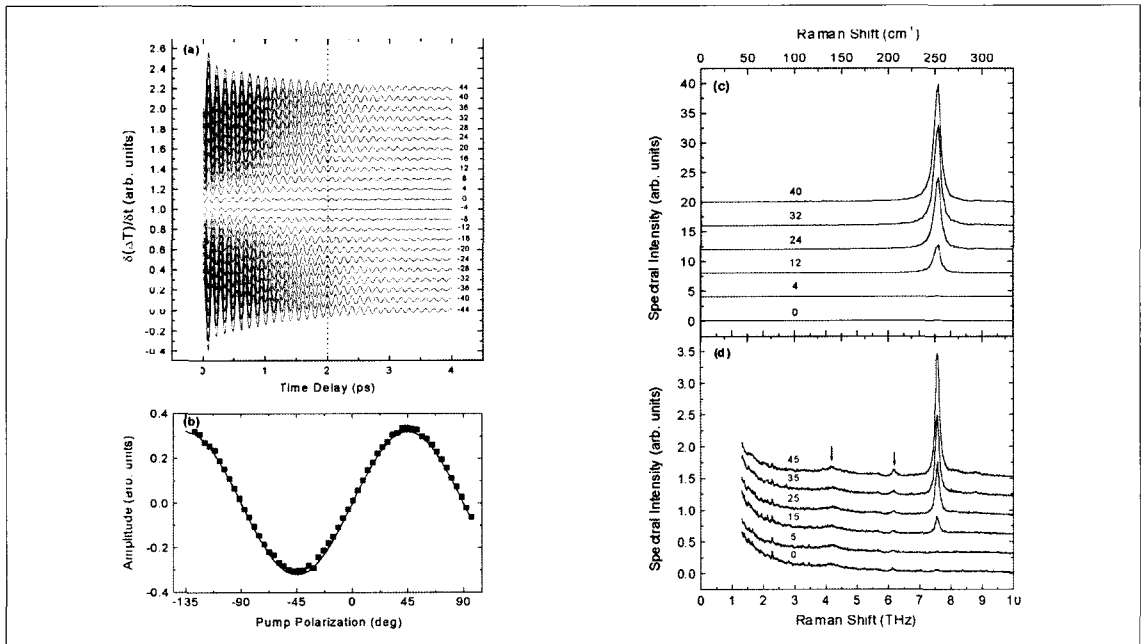


그림 7. (a) 투과율 변화, (b) 진동진폭의 편광의존성, (c) 결맞는 포논 진동의 푸리에 변환 분광선, (d) 연속광 라만산란 분광선의 비교.



연속광 라만실험으로부터 얻은 신호들의 여기광 편광각 의존성을 보여준다. LO 포논의 중심 주파수는 252.6 cm^{-1} (7.57 THz)이었고, 편광의존도는 푸리에 변환된 분광선(그림 7a)과 연속광 라만 분광선(그림 7d) 모두 상당히 유사하였다. 여기서 푸리에 변환된 분광선의 신호 대 잡음비가 연속광 라만 분광선의 경우와 거의 같은 점은 흥미롭다. 푸리에 변환된 LO 포논 분광선의 선폭은 8 cm^{-1} 로 연속광 라만 분광선의 선폭 5 cm^{-1} 보다 1.5배 크며, 이는 결맞는 포논진동의 역학적 성질이 여기광 밀도에 의존함을 나타낸다. 이러한 ZnSe 결맞는 포논 실험을 통해 포논진동의 위상이완시간을 정밀하게 추출할 수 있다. 이로부터 여기광 세기에 변화에 따른 포논의 동역학적 변화를 추적할 수 있을 뿐더러, 낮은 온도에서 일어나는 결맞는 LO 포논 감쇠로 나타나는 비조화 감쇠과정(three phonon anharmonic decay processes)을 정확히 추적할 수 있다. 결맞는 LO 포논진동의 온도의존성으로부터 4가지의 LO 포논 감쇠통로 중에 주된 감쇠통로는 브릴루앙 대역에서 X방향으로 LA(1.34 THz) & TO(6.15 THz) 포논모드

발생과 X방향으로 LA(5.37 THz) & TA(2.02 THz) 포논모드 발생 통로임을 확인할 수 있었다.

(3) GaN 및 ZnO 결정에서의 결맞는 광학적 포논진동

최고 큰 에너지 띠를 갖는 GaN, InGaN, ZnO와 같은 반도체는 청색 및 자외선 파장영역의 광전자 소자 개발과 고온 전자소자로의 개발 가능성 때문에 주목받고 있다. 그동안 CW 라만과 비탄성 X선 산란실험을 이용하여 3족 질산염 매질들의 포논모드의 주파수와 그 분산 특성에 관하여 집중적으로 연구되고 있다^{10, 11}. Wurtzite GaN 시료에 관해서는 시분해 반스톡스 라만 실험을 통해 그 $A_1(\text{LO})$ 모드와 $E_2(\text{LO})$ 모드들의 산란율이 조사되었다^{12, 13}. 하지만 GaN 시료에서의 포논 동역학에 대한 그동안의 시분해 연구는 매우 드물었고, 또한 그 연구도 특정 모드에만 국한된 연구되었다. GaN/InGaN 양자우물 구조에서 큰 음향 격자 진동에 관한 실험이 보고되었지만¹⁴, GaN 물질

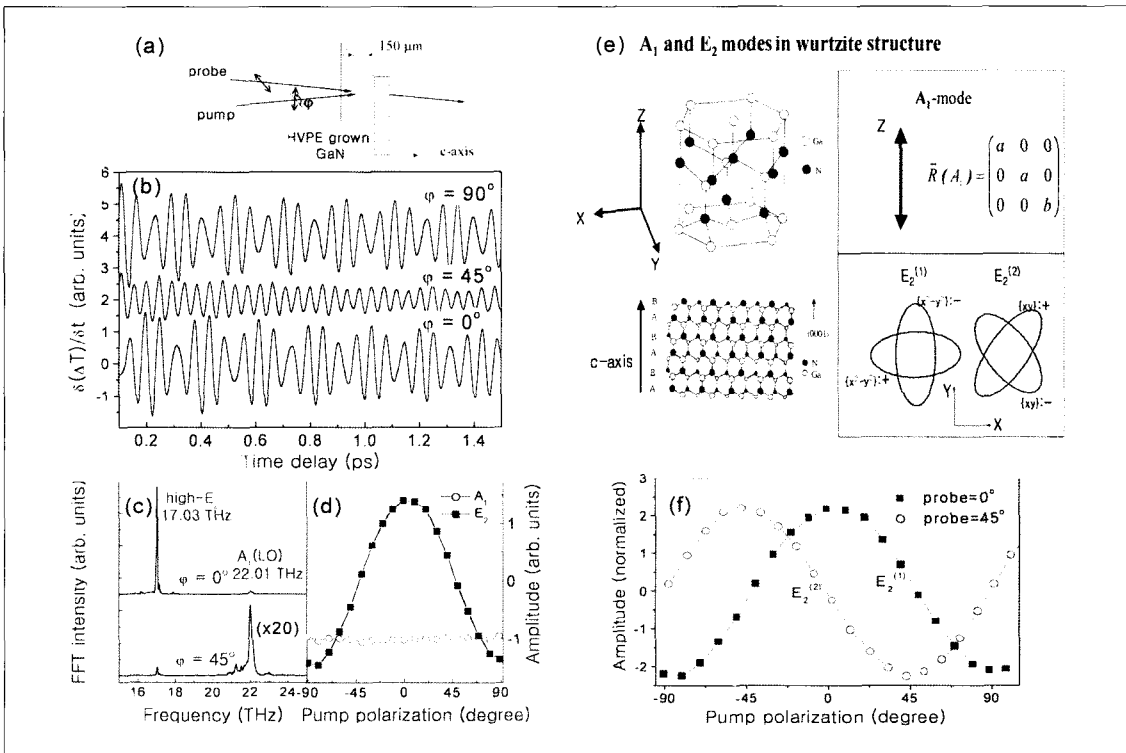


그림 8. GaN 결정에서의 결맞는 포논 실험에서 (a)여기-탐사방법의 실험구조, (b) 여기광의 주요 편광변화에 따른 주파수 변화, (c) 편광각 $\varphi=0^\circ$ 및 $\varphi=45^\circ$ 일 때 포논 진동의 푸리에 변환 분광세기, (d) E_2 모드와 $A_1(\text{LO})$ 모드의 포논 초기진폭의 편광의존성, (e) GaN 및 ZnO 결정구조와 각 포논에 대응되는 핵 좌표운동, (f) GaN에서 이중 축퇴된 E_2 모드의 편광의존성

반도체에서의 펄스 분광학

에서 결맞는 광학적 포논발생에 관한 보고는 아직 없었다. 반도체에서 결맞는 포논 발생에 관한 많은 보고 중에서 대부분은 광자의 에너지가 반도체 에너지 띠보다 큰 경우에 국한된 점은 주목할 만하다.

실험방법은 앞서 기술한 ZnSe 반도체의 경우와 거의 동일하며, 시료는 두께 150 μm 인 GaN 결정과 두께 500 μm 인 ZnO로 성장방향은 Wurtzite 결정의 축과 동일하다.

그림 8a는 실험구조를 나타낸다. 탐사광의 편광방향은 하나의 주축([100], x)방향으로 하였고, 여기광의 편광방향 각도는 GaN의 [100] 방향으로부터의 사이각 ϕ 이다. 여기광의 편광방향 각도변화에 따른 투과율의 시간변화를 그림 8b에 보였다. 각도 $\phi = 0^\circ$ 및 90° 일 때 두 주파수 성분으로 인한 맥놀이 현상이 보였고, 각도 $\phi = 45^\circ$ 일 때에는 단지 한 주파수 성분의 진동만 보였다. 그림 8c는 이들 신호들을 각각 푸리에 변환하여 얻은 $A_1(\text{LO})$ 모드와 두 개의 축퇴된 E_2 모드 중에서 높은 진동주파수에 해당하는 E_2 모드들의 분광세기를 나타낸다. 또 그림 8d는 여기광의 편광방향 변화에 따른 이들 두 라만 모드 진폭들의 의존성을 나타낸다. 여기서 라만 진동방향이 결정의 c축 방향인 A_1 모드의 진폭은 여기광 편광방향에 거의 무관함을

보였고, 반면에 결정의 축 방향에 수직인 평면에서 진동하는 E_2 모드 경우에는 반대의 경향을 보였다. A_1 모드의 라만텐서는 파수벡터 방향이 c축 방향인 광자에 대해 고유 텐서이다. 이런 점은 A_1 라만모드가 파수벡터가 축인 여기광의 편광방향에 대해 일정한 라만진폭을 갖는 측정결과를 잘 설명하고 있다. 이에 반하여 군이론에 따르면 Wurtzite 결정구조는 두 개의 축퇴된 E_2 라만모드들, 즉 기본함수가 각각 $(x^2 - y^2)$, (xy) 인 $E_2^{(1)}$ 와 $E_2^{(2)}$ 를 예상한다¹⁵. 여기서 A_1 모드는 전기쌍극자 허용모드이고 E_2 모드는 전기사극자 허용모드이다. 그림 8e는 E_2 라만모드에 따른 핵좌표 운동을 묘사하고 있다. $E_2^{(1)}$ 모드 경우에는 핵좌표의 변화가 x축과 y축 방향을 중심으로 일어나고, 기본함수가 (xy) 인 $E_2^{(2)}$ 모드 경우에는 $E_2^{(1)}$ 모드 경우에 대해 45° 회전된 진동축 방향을 중심으로 일어난다. 축퇴된 라만모드들에 대해 라만 산란 진폭 S는 다음과 같이 주어진다.

$$S(E_2^{(1)}) \propto d \cos(2\phi), \quad S(E_2^{(2)}) \propto d \sin(2\phi) \quad (5)$$

이로부터 그림 8d에서 알 수 있듯이 E_2 라만 모드 진폭의 여기광 편광의존성은 식 (5)와 같은 라만 선택율과 같

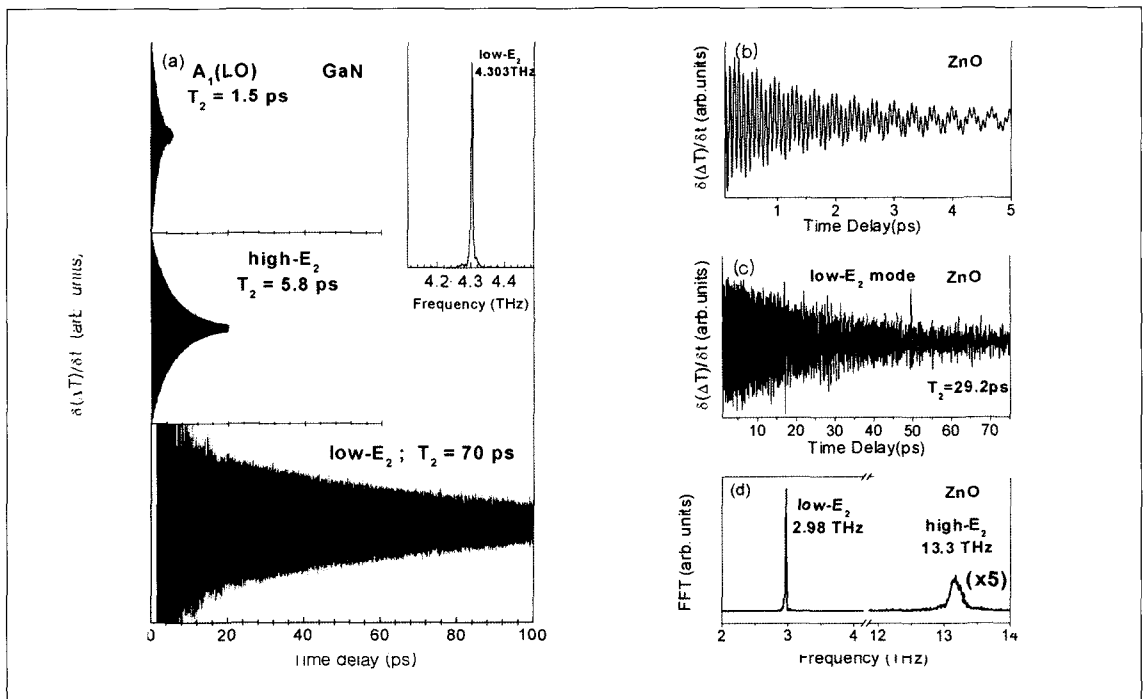
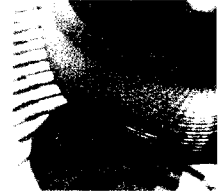


그림 9. (a) GaN 결정에서 측정된 결맞는 LO A_1 모드, 높은 주파수의 E_2 모드 및 낮은 주파수의 E_2 모드 진동 및 분광선, (b) ZnO 결정에서 높은 주파수의 E_2 모드 및 낮은 주파수의 E_2 모드의 맥놀이 진동, (c) 장 시간지연에서의 낮은 주파수 E_2 모드 진동, (d) E_2 모드들의 분광선



일치됨을 알 수 있다. 따라서 GaN 결정에서 결맞는 광학적 포논모드들의 발생기저는 순간 유도라만 산란임을 나타낸다. 그림 8f는 탐사광의 편광방향이 각각 축인 경우(채워진 사각형)와 x 축에 대해 45° 인 경우(속이 빈 원)에 라만 진폭의 여기광 편광의존성을 나타낸다. 여기서 탐사광의 편광방향을 변화시키기에 따라 관측되는 E_2 라만모드의 진폭도 위상천이가 수반되는 점은 흥미롭다. 이와 같은 탐사광의 편광방향 변화에 따라 수반되는 E_2 라만모드들의 두 진동진폭 사이의 위상천이는 탐사광의 편광방향 변화가 두 개의 축되된 E_2 모드들을 각기 분리시키는 작용임을 인식하면 쉽게 이해될 수 있다. 이는 결맞는 라만 진동에 고유한 위상정보로부터 동일한 라만 주파수와 선평을 갖지만 서로 다른 대칭구조를 갖는 두 라만모드들을 선택적으로 여기시킬 수 있음을 의미한다.

앞서 기술한 바와 같이 결맞는 포논 기법은 분명한 장점 중의 하나는 포논의 수명시간을 시간영역에서 직접 측정할 수 있다는 점이다. 그림 9a는 GaN 결정에서 $A_1(\text{LO})$ 모드와 높은 주파수 및 낮은 주파수의 E_2 모드들의 위상이 완을 나타낸다. 낮은 주파수의 E_2 모드의 초기 진폭은 높은 주파수 E_2 모드에 비해 매우 작지만, 그 모드의 느린 위상이완 때문에 긴 시간지연에서는 그 모드가 두드러진다. 지수형 감소를 고려한 모사로 추출한 A_1 모드와 높은 주파수 및 낮은 주파수의 E_2 모드들의 위상이완시간은 각각 1.5 ps, 5.8 ps, 70 ps 이었다. 높은 주파수 및 낮은 주파수의 E_2 모드 사이에 격자진동의 대칭성은 동일하지만, 각기 열 배 이상의 위상지연시간을 보임은 흥미롭다. 이점은 낮은 주파수의 E_2 모드에 비해 높은 주파수의 E_2 모드가 아마도 이완과정 끝에 도달하는 최종상태의 수가 많기 때문으로 이해된다. 시간영역에서 측정된 라만진동을 푸리에 변환하고, 변환된 분광세기를 Lorentz 모양을 가정하여, 구한 낮은 주파수의 E_2 모드 주파수는 4.303 THz 이었고 그 전반치폭은 0.0051 THz 이었다. 이러한 전반치폭 값은 이전에 측정된 연속광 라만 측정값에 비해 약간 적다^[16]. 이와 같은 차이는 결맞는 포논 실험이 긴 시간 지연을 통해 직접적으로 수명시간을 측정하기 때문에 상대적으로 보다 높은 정밀도를 갖기 때문으로 보인다. 그림 9b는 ZnO에서의 높은 주파수 및 낮은 주파수의 E_2 모드 사이에 맥놀이 진동을 보이고 있고, 그림 9c는 보다 긴 시간지연에서 두드러진 낮은 주파수의 E_2 모드를 나타내고 있으며, 이들의 위상이완시간은 각각 1.75 ps와 29.2 ps 이었다.

그림 9d는 이들 모드들의 분광선을 나타내며, 그 물리적인 특성은 GaN 경우와 매우 유사하였다^[17].

광자의 에너지가 반도체의 에너지 띠보다 적더라도 이광자 또는 삼광자 흡수에 의해 자유 여기자를 발생시킬 수 있다. 실제 실험적으로 추정되는 여기자 밀도는 여기광의 침투출력 변화에 두 제곱 또는 세 제곱으로 비례함을 알 수 있는 데, 이는 이광자 또는 삼광자 흡수를 가정한 것과 일치함을 알 수 있다. 이때 전자나 양공들이 여기되면, 결맞는 광학적 포논들과 이들 여기자와의 상호작용을 예상할 수 있으며, 이에 따라 서로 다른 광학적 포논 모드과 여기자와 강하게 결합하는 지 밝힐 수 있다. 실제 GaN 결정에서 여기자와의 강한 Frohlich 퍼텐셜 상호작용을 하는 A_1 모드가 전기쌍극자작용이 금지되어 있는 E_2 모드 보다 여기자와의 강한 작용하여 위상이완시간이 에너지 밀도에 따라 급격히 짧아짐을 확인할 수 있었다. 이는 이전의 연속광을 이용한 라만실험 결과들과 일치한다.

4. 결론

레이저광이 갖는 결맞음성이 응집물질인 반도체에 옮겨져 유지되는 그 결맞는 상태는 보통 빠른 이완과정을 겪는데, 이 과정 속에는 실제 및 가상의 여기상태를 포함하여 반도체의 양자역학적 동역학 현상을 발생시킨다. 종래의 원자광학분야에서의 연구방법과는 달리 이와 같은 빠른 이완시간과 펨토초/피코초 레이저광을 이용하여 선택적으로 가상 및 실제 여기상태를 발생시킴으로써, 가상-실제 여기라는 근본적인 현상 관측이 가능해졌으며 이를 통해 가상-여기상태를 제어할 수 있는 가능성이 제시되었다. 아울러 이러한 새로운 접근방법은 비단 반도체뿐만 아니라, 원자를 비롯한 모든 빛과 상호 작용하는 물질에 확대 적용할 수 있을 것이다.

한편 펨토초 펄스를 이용한 반도체 포논 시분해 분광학 실험은 기존의 연속 라만실험에 비해 초고속 현상과 관련된 정밀한 실험결과들을 보이고 있고, 아울러 포논 동역학에 관한 새로운 접근방법은 제시하고 있다. GaAs 양자우물구조에서의 실험결과로부터 알 수 있듯이 결맞는 포논 진동은 연속 라만실험과는 달리 다양한 기저에 따라 지배받고 있으며, ZnSe 및 GaN, ZnO 등 반도체 실험의 경우처럼 결맞는 포논 실험은 시료에 대한 엄격한 제한에서 벗

반도체에서의 펄스 분광학

어나 보다 보편적으로 적용될 수 있는 정밀한 실험기법임을 알 수 있다. 특히 반도체 에너지 띠보다 낮은 광자의 펄스 초 필스를 이용한 결맞는 포논 실험은 순수 포논의 동역학에 관한 다양한 물리현상뿐만 아니라 여기자와 포논 사이의 상호작용에 의한 동역학을 동시에 관측할 수 있다는 점에서 주목할 만하다. 현재 결맞는 격자진동이나 포논에 대한 연구는 몇몇 반도체, 강유전체, 초전도체 및 금속 등에서 상전이 현상과 관련하여 비교적 다양하게 연구되고 있으나, 아직 이 연구는 초보적 수준이며 나노소재를 포함하여 보다 다양한 시료에서 인위적인 결맞는 포논들의 발생, 탐사 및 제어를 위한 연구가 보다 활발해질 전망이다.

참고문헌

- (1) Y. H. Ahn, S. B. Choe, J. C. Woo, D. S. Kim, S. T. Cundiff, J. M. Shacklette, and Y. S. Lim, Phys. Rev. Lett. 89, 237403 (2002).
- (2) M. Sergent, M. O. Scully, and W. E. Lamb, Laser Physics (Addison-Wesley, Reading, MA, 1974).
- (3) W. A. Kutt, W. Albrecht, and H. Kurtz, IEEE J. Quantum Electron. 28, 2434 (1992).
- (4) H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. B 45, 768 (1992).
- (5) A. H. Zewail, J. Phys. Chem. 97, 12427 (1993).
- (6) R. A. Matthies, R. W. Schoenlein, L. A. Peteanu, Q. Wang, and C. V. Shank, Femtosecond Reaction Dynamics (edited by D. A. Wiersman, North-Holland, Amsterdam, 1994) P. 229.
- (7) G. C. Cho, W. Kutt, and H. Kurtz, Phys. Rev. Lett. 65, 764 (1990).
- (8) G. A. Garrett, T. F. Albrecht, J. F. Whitaker, and R. Merlin, Phys. Rev. Lett. 21, 3661(1996).
- (9) K. J. Yee, Y. S. Lim, T. Dekorsy, and D. S. Kim, Phys. Rev. Lett. 86, 1630 (2001).
- (10) V. Yu. Davydov, Yu. E. Kitaev, I. N. Goncharuk, A. N. Smirnov, J. Graul, O. Semchinova, D. Uffmann, M. B. Smirnov, A. P. Mirgorodsky, and R. A. Evarestov, Phys. Rev. B 58, 12899(1998).
- (11) T. Ruf, J. Serrano, M. Cardona, P. Pavone, M. Pabst, M. Krisch, M. D'Astuto, T. Suski, I. Grzegory, and M. Leszczynski, Phys. Rev. Lett. 86, 906 (2001).
- (12) K. T. Tsen, R. P. Joshi, D. K. Ferry, A. Botchkarev, B. Sverdlov, A. Salvador, and H. Morkoc, Appl. Phys. Lett. 68, 2990 (1996).
- (13) K. T. Tsen, D. K. Ferry, S. M. Goodnick, A. Salvador, and H. Morkoc, Physica B 272, 406(1999).
- (14) C. K. Sun, J. C. Liang, C. J. Stanton, A. Abare, L. Coldren, and S. P. Denbars, Appl. Phys. Lett. 75, 1249 (1999).
- (15) A. K. Ramdas and S. Rodriguez, in Light Scattering in Solids VI, edited by M. Cardona and G. Guntherodt (Springer, Berlin, 1991).
- (16) L. Bergman D. Alexson, R. J. Nemanich, M. Dutta, M. A. Strosio, C. Balkas, and R. F. Davis, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. 4S1, G6.65 (1999).
- (17) K. J. Yee, K. G. Lee, E. Oh, D. S. Kim, and Y. S. Lim, Phys. Rev. Lett. 88, 105501 (2002).

약 령



임용식

현재근무처 : 건국대학교 신소재과학부 광전자물리전공 부교수
 최종학력
 1995. 8. 서울대학교 물리학과 이학박사
 1986. 2. 서울대학교 물리학과 이학석사
 1984. 2. 서울대학교 물리학과 이학사
 주요경력
 1996. 9 ~ 현재 건국대학교 재직
 1995. 9. ~ 1996. 8. 한국원자력연구소 박사후 연구원
 주관심분야 : 초고속 레이저 개발, 반도체 초고속현상



김대식

근무처 : 서울대학교 물리학과 부교수
 최종학력
 1990 U.C. 버클리 박사(physics)
 1986 U.C. 버클리 석사(biophysics)
 1985 서울대학교 학사(물리학)
 주요경력
 91~93 AT&T 벨연구소 박사후 연구원
 93~94 오를라호마 대학 연구원
 94~ 서울대학교 물리학과 교수
 주요관심분야
 반도체 초고속 현상 연구
 표면 플라즈몬의 시간분해 및 근접광 연구