

## GaAs 이중 양자우물구조에서 고자기장에 유도된 대전된 엑시톤의 발생

김용민<sup>†</sup>

### Formation of Charged Exciton in GaAs-AlGaAs Double-Quantum-Well Structure at High Magnetic Field

Yong Min Kim<sup>†</sup>

Abstract

The photoluminescence was measured in GaAs-AlGaAs double-quantum-well structure at high magnetic field. Although the phototransition characteristics displayed a free-particle transition at low magnetic field, the change of free-particle transition into bound-exciton transition was observed at high magnetic field (above 10 T). A charged exciton formation due to charge-unbalanced electron-hole was identified by using a spin-polarized photoluminescence method. An increase of exciton formation due to the localization of free-particle at magnetic field was observed according to the increase of magnetic field.

**Key words** : Quantum Well, High Magnetic Field, Photoluminescence, Exciton

#### 1. 서 론

도핑을 하지 않은 진성반도체 양자우물의 경우 에너지 간극 (energy gap)을 뛰어 넘는 빛을 조사하는 경우 생성된 전자와 양공 쌍은 Coulomb 상호작용에 의하여 수소원자(H)와 같은 속박상태인 exciton (X)을 형성하게 된다. 그러나 도핑을 한 반도체의 광전이 특성을 살펴보면 빛의 조사하기 전 이미 많은 수의 자유전하들이 존재하며 이들 자유수송입자 사이의 차폐효과에 의해 exciton 형성이 될 수 없고 자유입자들의 광전이가 나타나게 된다. 이때 도핑 된 반도체 양자우물에 고자기장을 걸어주게 되면 이들 자유수송입자들이 자기장에 의한 국소화로 인하여 Coulomb 상호작용이 커져 exciton을 형성할 수 있게 된다. 진성반도체 양자우물의 경우 전자와 양공은 빛을 비추는 경우에만 쌍으로 생성되기에 전자와 양공의 수가 항상 같을 수밖에 없다. 이에 비하여 도핑 된 양자우물의 경우 고자기장하에서 exciton이 형성된다 하더라도 처음부터 전하의 비

가 불균형하였기 때문에 음 또는 양으로 대전된 exciton을 형성하게 된다. 예를 들어 n-형 반도체 양자우물의 경우 전자의 수가 양공의 수 보다 많기에 양공 하나에 두 개의 전자가 속박 된 음으로 대전된 exciton (X<sup>-</sup>)을 형성할 수 있으며 p-형 반도체 양자우물의 경우 두 개의 양공에 하나의 전자가 속박된 양으로 대전된 exciton (X<sup>+</sup>)이 형성 될 수 있다. 이러한 반도체에서 대전된 exciton의 존재는 이론적으로 이미 오래전 예견 되었으나<sup>[1]</sup> 일반적인 3차원 bulk 반도체 결정의 경우 대전된 exciton의 속박에너지가 너무 작아 발견되지 못하였다. 2차원 양자우물의 경우 대전된 exciton의 속박에너지가 충분히 크고, 반도체 박막의 성장 기술이 발전함에 따라 이러한 대전된 exciton의 존재가 실험적으로 검증되게 되었다.<sup>[2,3]</sup> 특히 exciton이 형성되지 않는다고 여겨지던 도핑 된 양자우물에서의 대전된 exciton의 발견은 이 분야의 이론과 실험 모두에 많은 연구를 촉진하게 되었다.<sup>[4-10]</sup> 그림 1은 도핑된 폭이 200Å인 대칭과 비대칭 양자우물의 구조와 파동함수를 계산한 예를 보여준다. Modulation-doping 기법으로 제작 된 양자우물에서 양쪽 장벽에 동일한 위치에 동일한 양의 도핑을 하는 경우 그림 (a)와 같이 전자와 양공 모두 우물의 중심에 있을 확률이 가장 커

경기도 용인시 죽전동 단국대학교 응용물리학과(Department of Applied Physics, Dankook University, Yongin 448-701, Republic of Korea)

<sup>†</sup>Corresponding author: yongmin@dankook.ac.kr

(Received : November 16, 2009, Accepted : November 24, 2009)

공간적으로 겹쳐있게 되는 반면, 양쪽 장벽에 비대칭적으로 도핑을 한 양자우물의 경우 (그림 (b)) 비대칭적인 양자우물이 형성 되고 전자는 우물의 좌측에 있을 확률이 큰 반면 양공은 우물 우측에 있을 확률이 커져 전자와 양공은 공간적으로 떨어져있게 된다. 이론적 연구에 있어서 Rashba는 좌우대칭을 가지는 사각 양자우물구조의 경우 숨겨진 대칭성 (hidden symmetry)으로 인하여 도핑 된 양자우물에서 대전된 엑시톤이 자기적으로 유도될 수 있다고 보고하였다.<sup>[11]</sup> 이에 반하여 Quinn 그룹에서는 좌우 형태가 다른 비대칭 양자우물의 경우를 가정하여 이론적 계산을 전개하였다.<sup>[12]</sup> 비대칭 양자우물의 경우 전자와 양공이 공간적으로 떨어져 존재하게 된다 (그림 1 (b)). 전자와 양공이 가까이

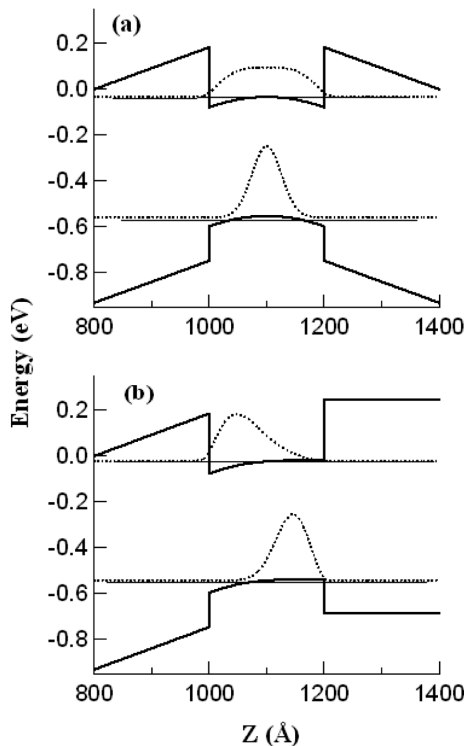


그림 1. 200 Å의 폭을 갖는 n-형 도핑을 한 단일양자우물의 에너지 대역과 파동함수의 계산 결과. 전도띠와 가전자띠 사이의 에너지는 1.0 eV의 off-set이 있다. (a) 좌우 장벽에 모두 대칭적으로 도핑을 한 경우 우물 가운데를 중심으로 좌우 대칭적이며 전자와 양공이 모두 우물의 중심에 존재할 확률이 가장 크게 되어 두 수송입자들은 공간적으로 겹쳐 존재하게 된다. (b) 좌측 장벽 부분에만 도핑을 한 비대칭 단일양자우물에서는 양자우물의 좌우가 비대칭적이며 전자는 우물 좌측에 양공을 우물 우측에 있을 확률이 커 전자와 양공이 공간적으로 떨어져있음을 보여준다.

있게 되면 Coulomb 상호작용이 커져 속박상태를 형성하게 되나 이들 입자사이의 거리가 충분히 커지게 되면 전자들 사이의 상호작용만이 작동되는 Laughlin-Halperin 상호작용만이 남게 된다.<sup>[12]</sup>

본 연구에서 우리는 한쪽이 단일 사각 양자우물 (single quantum well, SQW) 이며 다른 쪽이 단일이종 접합구조(single heterojunction, SHJ) 와 같은 삼각형 양자우물이 얇은 장벽을 사이에 두고 접합된 형태의 이중양자우물(그림 2)을 이용하여 고자기장하에서 광전이 특성을 조사하였다. 저자기장하에서는 사각단일 양자우물에서 Landau 전이가 나타남을 발견하였으며 모든 Landau 준위의 전자들이 가장 낮은 Landau 준위로 떨어지게 되는 자기장을 넘어서는 exciton 전이로 바뀐을 발견하였다. 자기장이 증함에 따라 SHJ 쪽의 전이는 급격히 스핀 편극된 전이현상을 보이게 되는데 이는 대전된 exciton의 단일상태 (singlet state)와 삼중 상태 (triplet state)들의 스핀 때문으로 파악하였다.

## 2. 실험

본 실험에 사용한 시료는 유기금속 화학기상증착 (Organo-Metallic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) 방법으로 3 종류의 시편을 제작하였으며 증착 순서는 다음과 같다. Semi-insulating GaAs 웨이퍼위에 GaAs buffer 층을 1 마이크로미터 쌓고 그 위에  $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$  장벽을 25Å 두께로 쌓은 후 두께  $w$ 인 GaAs 양자우물을 성장하고 800 nm  $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$  장벽을 쌓은 후 10.0 nm GaAs capping 층으로 시료를 마무리 하였다. 이때 사각 GaAs 우물의 두께  $w$ 는 각각 70, 85, 100Å 인 3개의 서로 다른 시료를 제작하였다. 도핑은 GaAs 사각 우물과 AlGaAs 장벽의 계면으로부터 30 nm 떨어진 곳에 실리콘을 delta-doping을 하여 dopant 불순물과 양자우물에 모인 전자들의 scattering을 감소시키는 modulation-doping 기법을 이용하였다. 광발광 (photoluminescence, PL) 측정을 위하여 Ar 이온 레이저의 566 nm line을 excitation source로 사용하였고 분광을 위하여 CCD 검출기가 장착된 30 cm 분광기를 사용하였다. 고자기장 발생을 위하여 18 T 초전도 자석과 50 T 펄스 전자석을 이용하였다. 시료는 flow cryostat을 이용하여 1.5 K의 저온을 유지하며 PL 측정을 하였다.

## 3. 결과 및 고찰

그림 2는 제작된 비대칭 이중 양자우물의 형태와 예

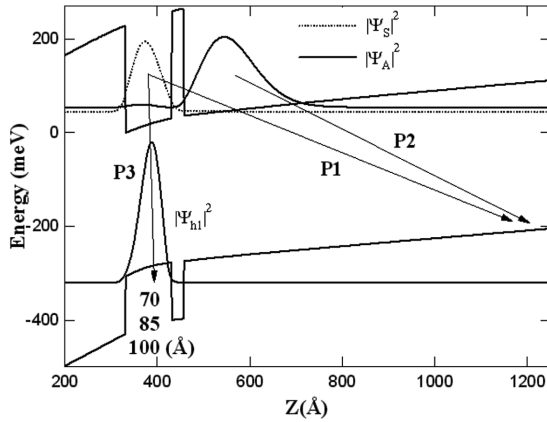


그림 2. Self-consistent 계산법을 이용하여 계산된 시료의 양자우물 구조와 전자확률분포. 사용된 시료는 양자우물 부분이 각각 70, 85, 100Å인 3개의 양자구조이며 이 시료들은 모두 P1, P2, P3 3가지의 가능한 광전이를 보여준다.

너지 준위 그리고 입자들의 파동함수를 계산한 결과를 보여주고 있다. 두 양자우물사이의 장벽이 충분히 얇을 경우 입자들은 장벽을 자유롭게 투과할 수 있고 이러한 투과에 따라 에너지 준위가 가까이 존재하게 된다. 이때 파동함수가 대칭인 경우 낮은 에너지 상태 ( $E_S$ )가 되고 반대칭인 경우 들뜬 상태( $E_A$ )가 된다. 이 두 에너지 사이의 크기가 투과에너지 간극  $\Delta_{SAS}$ 가 된다. 본 실험에 사용된 시료의 경우 가전자대역 (valence band) 구조가 한쪽은 열려있어 양공의 에너지 준위는 투과에너지 간극을 가지지 않고 전도대역의 전자들만 투과에너지 간극을 갖게 된다. 이러한 구조에서는 양자구조에서 3가지의 광전이 특성과 GaAs buffer 부분에서 bulk exciton 전이가 가능하다. 양자우물에서의 전이로는  $E_S$  준위에서 bulk 양공으로 전이하는 P1,  $E_A$  준위에서 bulk 양공으로 전이하는 P2 그리고 사각 양자우물의  $E_S$  준위에서 가전자대 양자우물의 무거운 양공 준위로 전이하는 P3가 존재하게 된다.

본 연구에 사용된 시료들의 경우 자기장이 없거나 저자기장하에서는 P3 전이가 매우 약하게 먼저 나오고 일정한 자기장 이상에서만 P1과 P2 전이가 형성됨을 발견하였다. 이에 따라 P3전이를 자세히 알아보기 위하여 초전도 자석을 이용하여 0.1 T 간격으로 15 T 까지 PL 측정을 하였다 (그림 3 (a)). 0 T의 P3 전이 PL peak는 자기장이 증가함에 따라 여러개의 Landau 준위들로 갈라지는 특성을 보여주고 있다. 자유전자가 자기장하에 놓이면 원운동을 하게 되는데 이를 cyclotron 운동이라 하며 이 cyclotron 운동의 에너지가 양자화

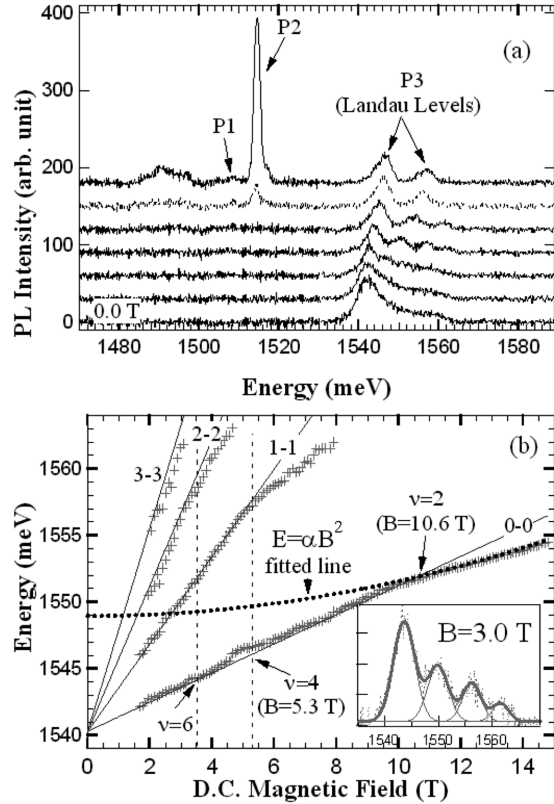


그림 3. (a) 0에서 6 tesla 까지 1 tesla 간격으로 찍은 PL spectrum. P1과 P2는 5 tesla 이상에서 급격히 나타남을 보이며 P3는 2 tesla 이상에서부터 Landau 전이를 보여준다. (b) 전이 에너지를 자기장의 함수로 표현한 그래프. 직선은 Landau level 계산 결과이고 점선은 자기장의 제곱에 비례하는 fitting 곡선이다.

되는 것을 Landau 준위라 한다. Landau 준위의 에너지는 다음과 같이 주어지며,

$$E_n = \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar w_c, \quad n = 0, 1, 2, 3, \quad (1)$$

이때 cyclotron 각진동수  $w_c = eB/m_{e,h}$ 이며  $e$ 는 전자의 전하량,  $B$ 는 자기장,  $\hbar$ 는 플랑크상수를  $2\pi$ 로 나눈 값이다. 또한  $m_{e,h}$ 는 각각 전자( $e$ )와 양공( $h$ )의 유효질량을 나타낸다. 자유입자들의 Landau 준위들 사이의 광전이에서 전자와 양공의  $n$  값이 같은 경우에만 전이가 나타나게 되어 전이에너지는,

$$\Delta E_n = \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar (w_c^e + w_c^h) = \left(n + \frac{1}{2}\right) \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}\right) \hbar e B \quad (2)$$

인 PL 전이에너지 값을 갖게 된다. Landau 전이 계

산에서 전자와 양공의 유효질량은 각각  $m_e=0.067m_0$ ,  $m_h=0.250m_0$  ( $m_0$ 는 전자의 정지질량)로 하였다. 그림 2 (b)에서 직선은 Landau 준위간 광전이 에너지를 식 (2)를 이용하여 계산한 결과이며 +기호는 실험값을 나타낸 것으로 계산결과와 잘 일치함을 보여주고 있다. 전자와 양공의  $n$ 이 1과 2인 1-1과 2-2 전이에서 자기장이 증가함에 따라 계산 결과와 어긋나는 이유는  $E_A$  준위의 Landau 준위들이  $E_S$  Landau 준위들과 교차하게 되어 나타나는 Landau 준위 섞임 (mixing) 현상으로 볼 수 있다. 특이한 점은 가장 낮은 Landau 준위사이의 (Lowest Landau Level, LLL)의 광전이인 0-0 전이가 10T를 넘어서면서 자기장에 1차함수가 아닌 2차함수로 증가하고 있다는 점이다. 자유전하들이 자기장하에서 만드는 Landau 준위 전이는 식 (2)와 같이 자기장에 1차함수로 증가하여야하나 속박상태인 exciton의 경우 반자성을 띠게 되어 자기장의 2차함수로 전이 에너지가 증가하게 된다. 따라서 10T가 넘어서는 자유전하들이 자기장에 의해 유도된 exciton을 형성함을 알 수 있다. 자유전자들은 자기장이 증가함에 따라 높은  $n$  값을 가지는 Landau 준위에 있는 전자들부터 아래 준위로 서서히 떨어지게 된다. 이때 짝 찬 Landau 준위의 수  $\nu$ 를 살펴보면  $\nu=6$ 과 4에서  $n$ 이 2와 1인 준위들이 계산값에서 벗어나기 시작함을 알 수 있고,  $\nu=2$ 를 지나면서 자유전하들이 속박된 exciton 전이로 바뀌어 알 수 있다. 전하수송실험에서 Landau 준위들이 짝 찬 영역에서 Hall 저항이 일정하게 유지되는 현상을 정수 양자 Hall 효과라 하며, 광전이에서도 이러한 양자 Hall 영역에서 비정상적인 거동을 보이는 것이 많이 보고되었다. 특히  $\nu=2$ 인 상태는 Landau 준위 수는  $n=0$ 으로 하나의 Landau 준위만 남지만 하나의 Landau 준위는 각각 위 스핀과 아래 스핀의 두 준위로 갈라질 수 있기에 두 개의 주위가 차있는 상태로 이 영역에서부터 자유전하들이 exciton으로 전이가 일어났을 잘 알려져 있다. 일정한 자기장 이상 (>4 T) 영역에서 전이가 나타나는 P1의 대전된 exciton 거동을 보기 위하여 우리는 펄스자기장을 이용하여 45 T 정도까지 PL 측정을 하였다 (그림 4). 주된 전이 peak는 가장 높은 에너지에 bulk GaAs exciton이 존재하고 그 아래로 P1 전이가 있으며 P1 보다 낮은 에너지 상태에 2개의 작은 peak로 나타나는 P1의 대전된 exciton 들이 나타나고 있다. P1과 P2전이의 광자기 특성은 다른 논문에서 자세히 다룬바있다.<sup>[13]</sup> 그림 3에 보여준 바와 같이 P3 전이를 통하여 10T 이상의 고자기장하에서 이미 자유전하들은 exciton으로 전환을 하였음을 알고 있다. 따라서 n-형으로 도핑 된 본 시료들의 경우 고자기장하에

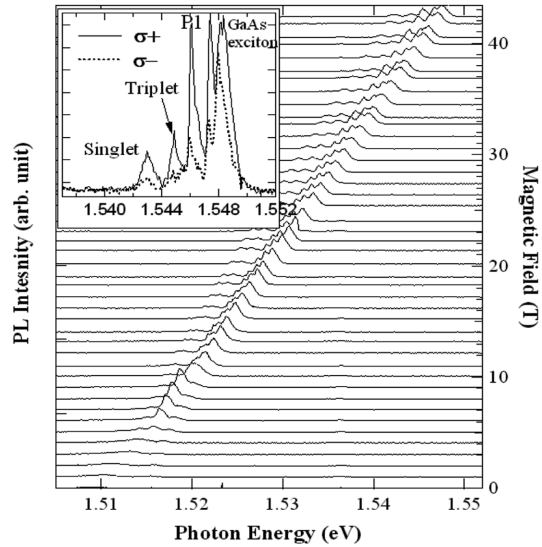


그림 4. 펄스자기장 하에서 100Å 양자우물을 갖는 시료의 PL 전이 스펙트럼. 매우 잘 발달 된 bulk GaAs exciton에 이어 P1 전이가 크게 나타나고 그 아래로 작은 두 개의 peak가 보인다. Inset은 45 T에서 스핀 편극 spectrum이다. 모든 peak들이 +, - 스핀 편극 전이를 보이나 대전된 exciton 전이인 singlet과 triplet의 경우 - 방향으로 거의 관측되지 않았다.

서는 음으로 대전된 exciton (X<sup>-</sup>)상태가 존재하여야 할 것이다. 대전된 exciton의 경우 여러개의 서로 다른 스핀 상태를 가질 수 있기 때문에 입자들의 스핀 상태를 확인하기 위하여 45 T에서 스핀 편극 (spin polarized) 된 PL 측정을 통하여 대전된 exciton들의 거동을 살펴본 결과가 그림 4 inset에 나타나있다. 모든 peak 들이 강하게 스핀 편극된 전이를 보여주나 특히 대전된 exciton인 singlet 과 triplet 전이는 + 방향으로 강하게 편극 된 반면 - 방향으로 거의 나타나지 않음을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

이상과 같이 우리는 비대칭 이중양자우물을 이용하여 매우 강한 펄스자기장하에서 스핀편극 광전이 특성을 측정하였다. 낮은 자기장에서는 우물간 전자와 양공의 전이 (P3)가 우세하며 이 전이는 Landau 전이를 잘 보여 주고 있으나 10 T를 넘어서 자유입자에서 속박된 exciton 전이로 전환됨을 발견하였다. 뒤늦게 5T 근방에서 나타난 P1과 P2 전이는 자기장이 증가함에 따라 전이 intensity가 지수함수적으로 증가하여 주된 전

이가 되고 강한 스핀 편극 전이 현상을 보여주고 있다. 특히 두 개의 스핀 계가 만드는 대전된 exciton의 singlet과 triplet 상태는 +방향으로 스핀 편극된 광전이를 보여주나 - 편극 방향으로서는 거의 나타나지 않음을 발견하였다.

### 참고문헌

- [1] M. A. Lampert, "Mobile and immobile effective-mass-particle complexes in nonmetallic solids" Phys. Rev. Lett. vol. 1, p. 450, 1958.
- [2] B. Stébé and A. Ainane, "Ground state energy and optical absorption of excitonic trions in two dimensional semiconductors" Superlattices Microstruct. vol. 5, p. 545, 1989.
- [3] K. Keng, R. T. Cox, Y. M. d'Aubigne, F. Bassani, K. Saminadayar, and S. Tatarenko, "Observation of negatively charged excitons X<sup>-</sup> in semiconductor quantum wells" Phys. Rev. Lett. vol. 71, p. 1752, 1993.
- [4] G. Finkelstein, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph, "Optical Spectroscopy of a Two-Dimensional Electron Gas near the Metal-Insulator Transition" Phys. Rev. Lett. vol. 74, p. 976, 1995.
- [5] Y. Kim, F. M. Munteanu, C. H. Perry, D. G. Rickel, J. A. Simmons, and J. L. Reno, "Magnetic-field-induced charged exciton studies in a GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As single heterojunction" Phys. Rev. B vol. 61, p. 4492, 2000.
- [6] F. M. Munteanu, Y. Kim, C. H. Perry, D. G. Rickel, J. A. Simmons, and J. L. Reno, Phys. Rev. B 61, 4731 (2000).
- [7] P. Plochocka, P. Kossacki, W. Masłana, J. Cibert, S. Tatarenko, C. Radzewicz, and J. A. Gaj, "Microwave magnetoelectric effects in single crystal bilayers of yttrium iron garnet and lead magnesium niobate-lead titanate" Phys. Rev. Lett. vol. 92, p. 177420, 2004.
- [8] Arkadiusz Wójs, "Numerical studies of free exciton and trion wave functions in high magnetic fields" Phys. Rev. B vol. 76, p. 085344, 2007.
- [9] E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, G. Karczewski, T. Wojtowicz, and J. Kossut, "Electron spin polarization through interactions between excitons, trions, and the two-dimensional electron gas" Phys. Rev. B vol. 76, p. 205310, 2007.
- [10] V. V. Solovyev\* and I. V. Kukushkin, "Measurement of binding energy of negatively charged excitons in GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As quantum wells" Phys. Rev. B vol. 79, p. 233306, 2009.
- [11] E. I. Rashba, M. D. Sturge, H. W. Yoon, and L. N. Pfeiffer, "Hidden symmetry and the magnetically induced "Mott transition" in quantum wells containing an electron gas" Solid State Commun. vol. 114, p. 593, 2000.
- [12] A. Wójs and J. J. Quinn, "Charged excitons in a dilute two-dimensional electron gas in a high magnetic field" Phys. Rev. B vol. 63, p. 045303, 2000.
- [13] Y. H. Shin, Y. H. Park, C. H. Perry, J. A. Simmons, T. Takamasu, and Yongmin Kim, "Softening of the tunneling gap in modulation-doped GaAs/AlGaAs asymmetric coupled double quantum wells in magnetic fields" Appl. Phys. Lett. vol. 95, p. 082101, 2009.