

자연 성장된 InAs/AlAs 양자점의 Photoreflectance 특성

김기홍^a · 심준형^b · 배인호^{b*}

^a경운대학교 안경광학과, 구미 730-852

^b영남대학교 물리학과, 경산 712-749

(2009년 4월 3일 받음, 2009년 5월 13일 수정, 2009년 5월 15일 확정)

MBE법으로 성장된 InAs/AlAs 양자점(quantum dots; QD) 구조의 광학적 특성을 photoreflectance(PR) 이용하여 조사하였다. Wetting layer(WL) 두께에 따른 전체 장벽의 폭이 달라짐에 따라 GaAs 완충층 및 WL 신호의 세기가 변화되었다. QD 층이 식각된 시료의 상온 PR측정 결과로부터 1.1~1.4 eV 영역의 완만한 신호는 InAs QDs과 WL에 관련된 신호임을 알았다. 온도 450~750°C범위에서 열처리 시켰을 때 WL층의 PR 신호가 red shift하였는데, 이는 열처리 후 InAs WL과 AlAs층 사이에 Al과 In의 내부 확산에 의해 양자점의 크기가 균일하게 재분포 되고, WL의 임계 두께가 증가하였음을 나타낸다.

주제어 : InAs/AlAs 양자점, Photoreflectance, Wetting laser, 열처리 효과

I. 서 론

반도체 산업과 더불어 나노기술(nanotechnology)의 발전은 새로운 반도체 소자의 개발을 가능하게 하였다. 반도체의 결정 크기가 나노 구조(nano-structure)로 작아짐에 따라 전하 운반자의 특성이 기존의 bulk 구조와는 다른 양자현상(quantum effect)을 나타내며, 양자우물(quantum well; QW) [1], 양자선(quantum wire; QWR) [2], 양자점(quantum dot; QD) [3]과 같은 양자소자(quantum devices)는 양자효과에 의한 물리적으로 새롭고 응용성이 뛰어난 특성들로 많은 연구가 이루어지고 있다 [4].

지금까지 Stranski-Kratanov(S-K)방법으로 자연성장된 양자점은 InAs/GaAs, InP/GaAs, InGaAs/GaAs 등 GaAs 기반(matrix)의 양자점에 대한 연구가 대부분이었다. 최근에 GaAs의 격자상수와 유사한 크기를 가지는 AlAs 기반의 InAs 양자점이 상대적으로 높은 dot 밀도와 더 작은 크기를 형성한다고 보고되었다 [5]. 이러한 구조는 InAs와 AlAs 사이의 띠 간격 에너지의 큰 차이로 인해 강한 양자구속(quantum confinement)을 가지며, GaAs 시스템과 비교하여 상대적으로 작은 dot 크기로 인해 발광(emission) 파장 대역을 가시광대로 더욱 짧게 할 수 있다 [6].

자연성장 양자점은 균일하고, 작으며, 높은 밀도로 형성

하기 위해서 낮은 기판온도에서 성장된다. 그러나 발광소자의 중심이 되는 장벽층과 덮개층의 고 품질 결정 성장을 위해서는 성장온도가 높아야 한다. 이러한 문제를 해결하기 위한 방법으로 성장 후 고온에서 열처리에 대한 연구가 진행되고 있다 [7,8]. 그러나 양자점을 구성하는 물질과 장벽 물질에 따라 열처리 후 양자점의 발광효율은 다르게 나타나고 있다 [9,10]. InAs/AlAs 구조에서 높은 장벽에 구속된 양자점의 거동을 이해하고, 열처리에 따른 양자점의 발광 특성을 이해하는 것은 고 품질의 양자점 소자를 제작하기 위해서 매우 중요하다.

본 연구에서는 분자선 에피택시(molecular beam epitaxy; MBE) 법으로 성장시킨 InAs/AlAs 구조에서, S-K 성장모드로 자연성장된 양자점을 둘러싼 얇은 AlAs 장벽이 양자점에 미치는 영향과 이러한 구조의 광학적 특성을 photoreflectance(PR) 분광법으로 조사하였다. S-K 성장모드에서 나타나는 특징인 wetting layer(WL)의 신호를 측정하기 위하여 InAs/AlAs 층을 식각한 후 PR 측정을 하였다. InAs 성장 두께에 따른 양자점의 거동을 알아보기 위하여, 성장 두께가 각각 2와 3 monolayer(ML)인 시료를 측정하였으며, 그리고 InAs/AlAs 구조의 시료를 온도 450~750°C에서 3분간 열처리 후 양자점의 특성 및 WL의 변화를 조사 분석하였다.

* [전자우편] ihbae@yu.ac.kr

II. 실험방법

본 연구에 사용된 시료는 분자선 에피택시(molecular beam epitaxy; MBE) 법으로 n-GaAs 기판 위에 560°C에서 완충층으로 불순물이 첨가되지 않은 GaAs를 5000 Å 성장 후, 그 위에 장벽으로 500 Å 두께의 AlAs층을 성장하였다. 성장을 중단(interruption)한 후 온도를 낮추어 460°C에서 AlAs과 약 7%의 격자 불일치를 가지는 InAs를 성장시켜 자발적인 3차원 양자점 성장을 유도하는 S-K 성장모드를 이용하였다. InAs층의 두께가 각각 2와 3 monolayer(ML)인 두 시료를 제작하였다. 그 다음으로 100 Å 두께의 AlAs과 Al의 산화를 방지하기 위해 50 Å 두께의 GaAs층을 성장하였다. PR 측정에서 여기광원으로는 He-Ne(35mW) 레이저를 사용하였고, 조사광원으로는 250 W의 텅스텐-할로젠 램프를 사용하였다. Monochromator를 통하여 단색화된 빛을 시료에 입사시키고, 반사된 빛을 Si photodiode로 검출하였다. 검출된 신호는 lock-in 증폭기를 거쳐 규격화 하였다.

III. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 InAs 성장 두께가 2와 3 ML인 시료에 대한 16 K에서의 PR 스펙트럼을 나타내었다. 측정된 PR 신호의 띠편 에너지를 구하기 위하여 식(1)과 같은 3차 미분형태의 함수식으로 피팅하였다 [11].

$$\frac{\Delta R}{R} = Re \left[\sum_{j=1}^P C_j e^{i\theta_j} (E - E_{jj} + i\Gamma_j)^{-n} \right] \quad (1)$$

여기서 R 은 반사이고 ΔR 은 변조된 빔에 의한 반사에 의한 차이, E 는 광에너지, P 는 스펙트럼의 데이터 총수를 나타낸다. 그리고 E_{jj} , Γ_j , C_j , θ_j 는 각각 띠편 전이 에너지, 평탄인자, 진폭 그리고 위상을 나타낸다. 식 (1)로 피팅한 결과 약 1.46, 1.48 및 1.51 eV에서 관측된 전이신호는 각각 WL 및 GaAs 완충층과 기판 신호이다. 그림에서 약 1.48 eV에서 나타나는 GaAs 완충층 신호는 InAs 성장 두께가 2 ML인 시료와 비교하여 3 ML에서 그 세기가 약해지면서 WL의 신호는 증가하였다. 이러한 현상은 S-K 방법으로 성장할 경우 3 차원 양자점이 형성되기 전에 약

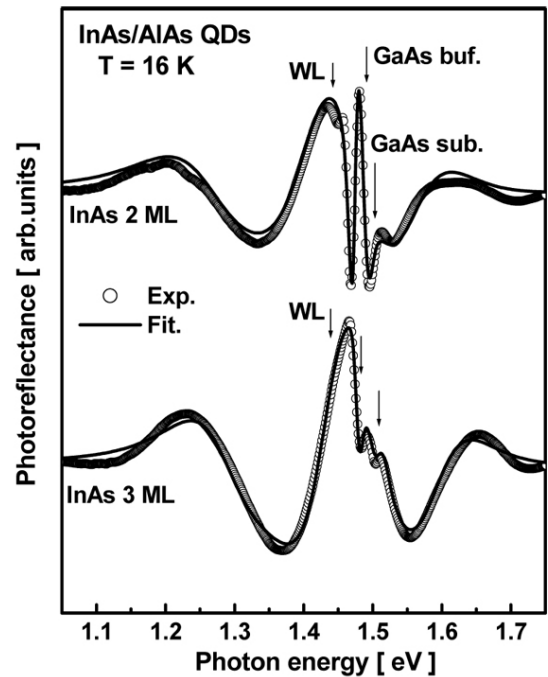


Figure 1. The PR spectra of InAs/AlAs QD at 16 K: top InAs 2 ML and bottom 3 ML.

1.67~1.7 ML 두께의 아주 얇은 2 차원적인 WL가 형성되며 [12] InAs 성장 두께가 증가하면서 WL 두께가 감소하였기 때문이다. 따라서 GaAs 완충층에서 생성된 운반자가 AlAs 장벽을 투과할 경우, WL 두께가 상대적으로 작은 3 ML의 시료에서 운반자의 이동이 더 크기 때문이다. 따라서 GaAs 완충층에서 발생한 운반자가 상대적으로 더 많이 양자점 및 WL층에 기여하게 되어, GaAs층의 변조효과는 감소하고 WL 신호는 증가하게 된다. 그리고 1.1~1.4 eV에서 나타난 신호가 도핑된 n-GaAs 기판의 띠편 끝단(band tail)에 의한 신호인지 아니면 InAs양자점에 관련된 것인지를 조사하기 위하여 GaAs 완충층 위쪽을 ion beam milling(IBM)으로 식각하였다. 표면층으로부터 식각된 두께는 약 100 nm로 GaAs 완충층 위쪽이 모두 식각되었으며, 이는 주사 전자 현미경(scanning electron microscope; SEM)으로 확인하였다.

식각 전 후의 상온 PR 측정 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 그림에서 식각 후 약 1.407, 1.433 eV에서 나타난 신호는 GaAs 완충층과 기판 신호이며, 1.1~1.5 eV의 완만한 신호가 관측되지 않은 것은 이러한 신호의 근원이 InAs 양자점과 WL임을 입증하는 결과이다. 약 1.399 eV에서 나타나는 WL 전이신호 아래쪽의 InAs 양자점 신호가 완만하게

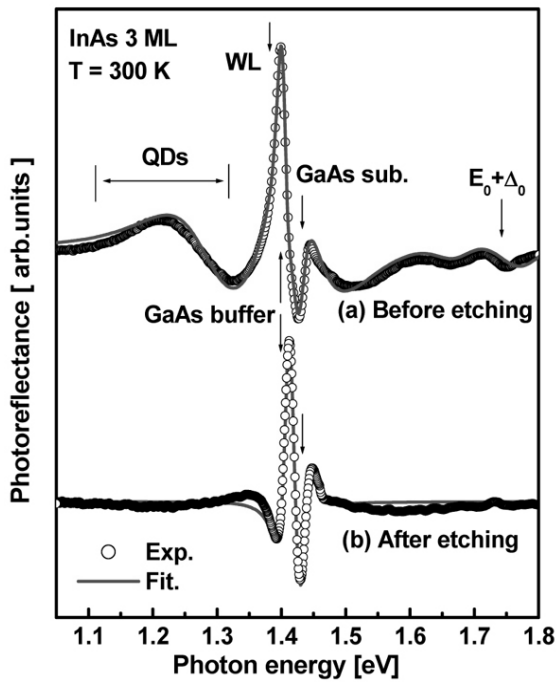


Figure 2. The PR spectra of etched sample (a) before etching and (b) after etching.

나타나는 것은 이중크기로 분포된 양자점 사이의 간섭효과로 양자점의 전이신호가 중첩되어 나타난 것으로 추정된

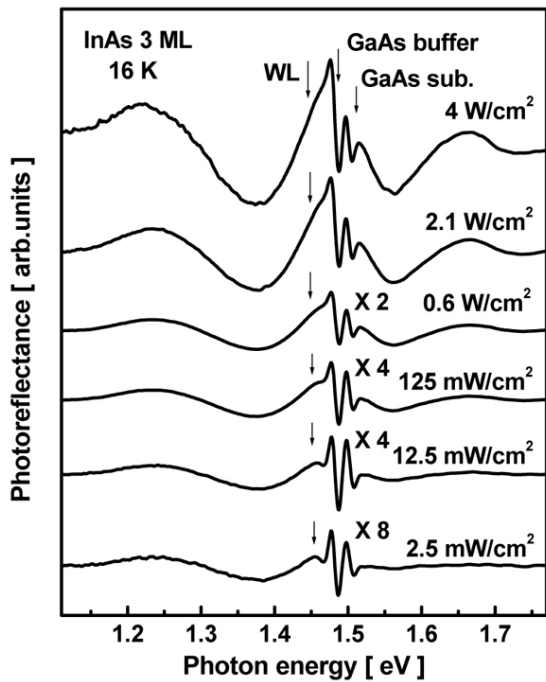


Figure 3. The excitation power dependence PR spectra for InAs 3 ML.

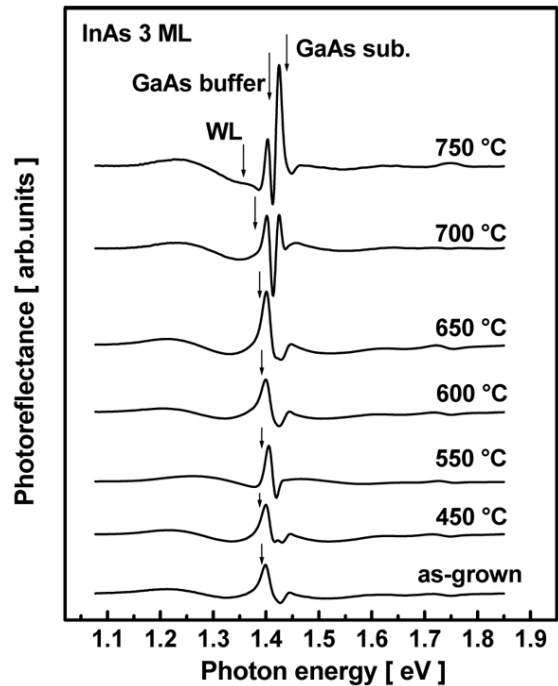


Figure 4. The PR spectra of InAs 3 ML sample, as a function of annealed temperature from 450°C to 750°C.

다. 완충층에서 생성된 운반자의 AlAs 장벽 투과현상을 더 자세히 알아보기 위하여 16 K에서 여기광원의 세기 의존성을 측정하여 그 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 여기광원의 세기가 증가함에 따라 GaAs 완충층, 기판 및 WL 신호가 모두 증가하고 있다. 만약 외부에서 WL로 운반자의 유입이 없을 경우 상대적으로 적은 상태수로 인하여 GaAs 층의 신호에 비하여 진폭의 세기의 증가율이 낮게 된다. 그러나 그림에서 보듯이 WL 신호가 GaAs 신호 보다 더 빠르게 증가하는 것은 GaAs 완충층에서 생성된 운반자가 AlAs 장벽을 투과하여 WL에 기여하기 때문이다.

Porsche 등 [13]과 Bansal 등 [14]이 보고한 바에 따르면, 낮은 성장률(growth rate)과 높은 성장온도가 이중크기 분포의 형성 원인으로 작용한다. 따라서 성장률을 높이고 낮은 온도에서 성장할 수록 단일형태(unimodal)가 됨을 체계적인 실험으로 증명하였다. 그러나 이러한 형태의 양자점을 성장하기 위해서 덮개층(cladding layer)과 보호층(capping layer)의 성장온도가 낮아질 경우, 전위(dislocation) 또는 틈(cavity)과 같은 결함(defect)이 발생하여 결정성(crystal quality)이 떨어지며, 이러한 결함은 비방사 재결합 센터(nonradiative recombination

center)로 작용하여 양자점 소자의 광학적 효율을 저하시킬 수 있다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 본 논문에서는 이종크기 분포로 형성된 시료를 열처리(thermal treatment)를 한 후 PR 특성을 조사하였다.

Fig. 4에서는 온도 450~750°C 범위에서 3분간 열처리 후 상온에서 측정한 PR 스펙트라이다. InAs/AlAs 구조의 시료에서 열처리 동안 표면으로부터 As의 방출을 방지하기 위하여 반절연된 GaAs 웨이퍼를 이용하여 face-to-face 법으로 수행하였다. 650°C 보다 낮은 온도에서 열처리를 한 경우, 약 1.39 eV에서 일정하게 나타나는 WL 신호가 700°C에서부터 저 에너지 쪽으로 이동하면서 750°C에서 약 1.35 eV로 약 40 meV 이동하였다. 또한 WL와 중첩된 GaAs 신호들이 WL의 이동과 함께 분리되면서 나타났다. 이러한 WL의 이동은 열처리 후 이종접합 사이의 응력이 완화되는 증거로서 InAlAs는 InAs과 AlAs의 격자상수 사이 값을 가지며, InAs WL 층과 AlAs 층에 Al과 In의 내부 확산으로 경계면의 격자 불일치를 완화시켜 응력이 완화 [15] 되면서 WL의 임계 두께가 증가하기 때문이다.

IV. 결 론

MBE 법으로 성장된 InAs/AlAs 양자점 구조에서 AlAs 장벽 보다 낮은 여기광원을 이용하여 장벽이 양자점에 미치는 영향과 성장 두께에 따른 양자점의 특성 및 열처리 효과를 photoreflectance 분광법으로 조사하였다.

- 1) 16 K에서 측정된 PR 스펙트럼에서 1.46, 1.48 및 1.51 eV의 신호는 각각 WL 및 GaAs 완충층과 기판 신호이다.
- 2) GaAs 완충층까지 식각한 시료의 PR 측정 결과 1.1~1.4 eV에서 완전한 신호는 양자점 및 WL에 관련된 신호이었다. 또한 여기광원 의존성을 통하여 완충층에서 생성된 운반자가 AlAs 장벽을 투과하여 WL에 기여함을 알 수 있었다.
- 3) 열처리 온도가 증가함에 따라 GaAs와 중첩된 WL의 신호가 저 에너지로 이동되었다. 이는 열처리 후 InAs WL와 AlAs층 사이에 Al과 In의 내부 확산에

의해 양자점의 크기가 균일하게 재분포 되고, WL의 임계 두께가 증가하였음을 나타낸다.

참고문헌

- [1] W. R. Frensley, *Heterostructure and Quantum Well Physics*, (Academic Press, 1995).
- [2] E. Kapon, D. M. Hwan, and R. Bhat, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 430 (1989).
- [3] P. Harrison, *Quantum Wells, Wires and Dots*, (The University of Leeds, UK, 1999).
- [4] 김현진, 윤의준, *전자공학회지* **30(5)**, 53 (2003).
- [5] S. Ganapathy, M. Kurimoto, P. Thilakan, K. Uesugi, I. Suemune, H. Machida, and N. Shimoyama, *J. Appl. Phys.* **94**, 4871 (2003).
- [6] J. Y. Leem, M. Jeon, J. Lee, G. Cho, C. R. Lee, J. S. Kim, S. K. Kang, S. I. Ban, J. I. Lee, and H. K. Cho, *J. Cryst. Growth*, **252**, 493 (2003).
- [7] A. O. Kosogov, P. Werner, and U. Gosele, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3072 (1996).
- [8] R. Leon, S. Fafard, P. G. Piva, S. Ruvimov, and Z. L. Weber, *Phys. Rev.* **B 58**, R4262 (1998).
- [9] E. K. Kim, J. S. Kim, K. Park, E. Yoon, and S. K. Noh, *J. Korean Phys. Soc.* **46**, S117 (2005).
- [10] G. X. Shi, P. Jin, B. Xu, C. M. Li, C. X. Cui, Y. L. Wang, X. L. Ye, J. Wu, and Z. G. Wang, *J. Cryst. Growth*, **269**, 181 (2004).
- [11] D. E. Aspnes, *Phys. Rev.* **B10**, 4228 (1974), D. E. Aspnes, *Surf.Sci.* **37**, 418 (1973).
- [12] D. Bimberg, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 1311 (1996).
- [13] J. Porsche, A. Ruf, M. Geiger, and F. Scholz, *J. Crystal Growth*, **195**, 591 (1995).
- [14] B. Bansal, M. R. Gokhale, A. Bhattacharya, and B. M. Arora, *J. Cryst. Growth*, **298**, 586 (2007).
- [15] Z. Zaaboub, B. Ilahi, L. Sfaxi, and H. Maaref, *Materials science & engineering C* **28**, 1002 (2008).

Self-Assembled InAs/AlAs Quantum Dots Characterization Using Photoreflectance Spectroscopy

Ki-Hong Kim^a, Jun Hyoung Sim^b, and In-Ho Bae^{b*}

^a*Department of visual optics, Kyungwoon University, Kumi 730-852*

^b*Department of physics, Yeungnam University, Kyongsan 712-749*

(Received April 3, 2009, Revised May 13, 2009, Accepted May 15, 2009)

The optical characterization of self-assembled InAs/AlAs quantum dots(QD) grown by MBE were investigated using photoreflectance spectroscopy. The intensities of the signals of the GaAs buffer and wetting layer(WL) changed with the width of the WL layer. The PR spectrum for the sample, in which QDs layer were etched off at room temperature, indicated that the broadened signal ranging 1.1~1.4 eV was originated from InAs QDs and WL. The intensities of signals of GaAs buffer and the WL changed with the WL width. A red shift of the PR peak of WL are observed when the annealing temperatures range from 450°C to 750°C, which indicates that the interdiffusion between dots and capping layer is caused by improvement in size uniformity of QDs.

Keywords : InAs/AlAs quantum dots, Photoreflectance, Wetting layer, Annealing effect

* [E-mail] ihbae@yu.ac.kr