

# AlAs 에피층 위에 성장된 InAs 양자점의 Photoluminescence 특성연구

김기홍·심준형\*·배인호\*†

경운대학교 안경광학과, \*영남대학교 물리학과

## Photoluminescence Characteristics of InAs Quantum Dots Grown on AlAs Epitaxial Layer

Ki-Hong Kim, Jun hyoung Sim\* and In-Ho Bae\*†

Department of visual optics, Kyungwoon University, Kumi, Korea

\*Department of physics, Yeungnam University, Kyongsan, Korea

(2009년 3월 14일 접수 : 2009년 6월 25일 최종수정 : 2009년 6월 26일 채택)

**Abstract** The optical characterization of self-assembled InAs/AlAs Quantum Dots(QD) grown by MBE(Molecular Beam Epitaxy) was investigated by using Photoluminescence(PL) spectroscopy. The influence of thin AlAs barrier on QDs were carried out by utilizing a pumping beam that has lower energy than that of the AlAs barrier. This provides the evidence for the tunneling of carriers from the GaAs layer, which results in a strong QD intensity compared to the GaAs at the 16 K PL spectrum. The presence of two QDs signals were found to be associated with the ground-states transitions from QDs with a bimodal size distribution made by the excitation power-dependent PL. From the temperature-dependent PL, the rapid red shift of the peak emission that was related to the QD2 from the increasing temperature was attributed to the coherence between the QDs of bimodal size distribution. A red shift of the PL peak of QDs emission and the reduction of the FWHM(Full Width at Half Maximum) were observed when the annealing temperatures ranged from 500 °C to 750 °C, which indicates that the interdiffusion between the dots and the capping layer was caused by an improvement in the uniformity size of the QDs.

**Key words** InAs/AlAs, quantum dot(QD), photoluminescence(PL).

### 1. 서 론

최근들어 나노기술(nanotechnology)의 발달로 반도체의 결정 크기가 나노 구조(nano-structure)로 작아짐에 따라 전하 운반자의 특성이 기존의 bulk 구조와는 다른 양자 현상(quantum effect)을 나타내며, 양자우물(quantum well; QW),<sup>1)</sup> 양자선(quantum wire; QWR),<sup>2)</sup> 양자점(quantum dot; QD)<sup>3)</sup>과 같은 양자소자(quantum devices)는 물리적으로 새롭고 응용성이 뛰어난 특성들로 많은 연구가 이루어지고 있다.

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.<sup>4)</sup> 이러한 구조는 InAs

와 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.<sup>5)</sup>

자연성장 양자점이 균일하고, 작으며, 높은 밀도로 형성하기 위해서 낮은 기판온도에서 성장된다. 그러나 발광소자의 중심이 되는 장벽층과 덮개층의 고 품질 결정 성장을 위해서는 성장온도가 높아야 한다. 이러한 문제의 대안으로 성장 후 고온에서 열처리에 대한 연구가 진행되고 있다.<sup>6,7)</sup> 그러나 양자점을 구성하는 물질과 장벽 물질에 따라 열처리 후 양자점의 발광효율은 다르게 나타나고 있다.<sup>8,9)</sup> InAs/AlAs 구조에서 높은 장벽에 구속된 양자점의 거동을 이해하고, 열처리에 따른 양자점의 발광 특성을 이해하는 것은 고 품질의 양자점 소자를 제작하기 위해서 중요하다.

본 연구에서는 분자선 에피택시(molecular beam epitaxy; MBE) 법으로 성장시킨 InAs/AlAs 구조에서, S-K 성장 모드로 자연성장된 양자점을 둘러싼 얇은 AlAs 장벽이 양자점에 미치는 영향과 온도 500~750 °C에서 각각 열

†Corresponding author

E-Mail : ihbae@yu.ac.kr (In-Ho Bae)

처리 후 양자점의 광학적 특성을 photoluminescence(PL) 분광법으로 조사하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에 사용된 시료는 분자선 에피택시법으로 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) 후 온도를 낮추어 460 °C에서 AlAs과 약 7 %의 격차 불일치를 갖는 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. PL 측정에서 여기광원으로는 He-Ne(35 mW) 레이저를 사용하였다. PL 실험에서 발광된 빛은 초점거리가 0.5 m인 monochromator를 통하여 단색화된 후 광전자 증배관(photomultiplier tube)을 이용하여 증폭하였다. PL에서 검출된 신호는 lock-in 증폭기를 거쳐 규격화 하였다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig. 1(a)와 (b)는 InAs 성장 두께가 각각 2와 3 monolayer (ML)인 InAs/AlAs 구조의 시료를 16 K에서 측정된 PL 스펙트럼이다. QD1과 QD2로 표기된 약 1.25과 1.37 eV에서 나타난 신호는 InAs 양자점에 관련된 신호

이며, 성장 두께에 따라 발광 피크 에너지는 비슷하지만, 그 세기와 반치폭(FWHM)은 각각 다르게 나타났다. 반치폭은 dot의 크기 분포를 나타내는 척도로써, 그림에서 QD2의 반치폭이 각각 131, 132 meV로서 그 차이가 미약한 것에 비해, QD1의 반치폭은 106에서 119 meV로 증가하였으며, QD2에 대한 QD1의 세기 증가비도 InAs 성장 두께가 2 ML인 시료보다 3 ML가 1.3배 증가하였다. Leonard등<sup>10)</sup>이 보고한 바에 따르면 InAs coverage가 증가할 수록 양자점의 크기가 증가하고, wetting layer (WL) 폭이 감소하였다. InAs 성장 두께의 증가에 따른 QD1과 QD2의 발광 피크 에너지는 변화없고, 반치폭과 세기만 변화된 것은 단일크기(one-size) 분포에 의한 바닥상태와 여기상태로부터 발광된 신호가 아닌 이중크기(bimodal size) 분포에 의한 바닥상태 신호이다. QD1은 상대적으로 큰 크기 군집의 바닥상태의 발광 신호이며, QD2는 상대적으로 작은 군집의 바닥상태의 신호이다. 또한 바닥상태 발광 신호의 세기는 dot의 분포 수에 의존하며, 발광세기가 큰 QD2의 분포 수가 QD1 보다 많음을 알 수 있다. InAs 성장 두께가 증가함에 따라 QD1의 반치폭 및 세기 증가는 상대적으로 큰 크기의 dot 분포가 증가하였음을 나타낸다. 또한 S-K 방법으로 성장할 경우, 3 차원 양자점이 형성되기 전에 약 1.6-1.7 ML 두께의 아주 얇은 2 차원적인 WL가 형성되며,<sup>11)</sup> 본 실험에서는 약 1.46 eV에서 WL의 신호가 관측되었다. WL의 신호는 InAs 성장 두께가 2, 3 ML일 때 그 반치폭이 각각 56, 48 meV로 InAs 성장 두께가 증가함에 따라 감소하는데, 이는 WL의 두께가 감소되기 때문이다.

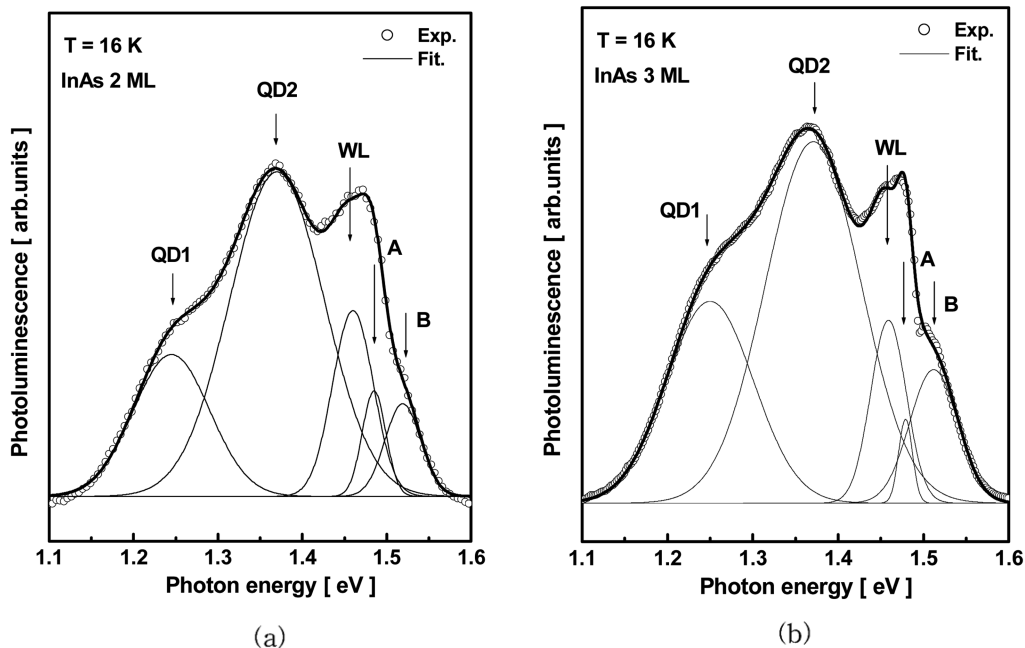


Fig. 1. The Gaussian fitting of the PL spectrum measured at 16 K. (a) InAs 2 ML , (b) InAs 3 ML.

그리고 A와 B로 표기된 약 1.48과 1.51 eV에서의 신호는 각각 GaAs 완충층 및 n-GaAs 기판에 의한 신호이다. 일반적으로 양자점 층의 상태수가 에피층보다 작으므로 자체 생성 운반자에 의한 발광일 경우 양자점 신호의 세기가 에피층 신호보다 작게 된다. 그러나 그림에서와 같이 16 K에서 측정된 PL 스펙트럼에서 양자점 신호의 세기가 GaAs 완충층의 신호보다 더 크게 나타난 것은 양자점층에 외부에서 생성된 운반자가 공급되었음을 의미한다. 시료의 구조상 운반자의 공급층은 AlAs와 GaAs층이 가능하나, 본 실험에서 사용된 여기 광원(He-Ne)은 GaAs층만 여기가 가능하므로, 이 경우 운반자 공급층은 GaAs층이 된다. GaAs 층에서 생성된 운반자가 양자점층에 공급되기 위해서는 AlAs 장벽을 투과하여야만 가능하다. Fig. 1의 2 ML 시료에서는 A, B 신호의 세기가 비슷하나 3 ML에서는 완충층 신호인 A의 세기가 상대적으로 감소한 것은 완충층에서 생성된 운반자가 장벽을 투과하기 때문이다.

InAs/AlAs 구조에서 측정된 양자점의 이중크기 분포의 특징을 관측하기 위하여 16 K에서 측정된 여기광 세기의 의존성을 Fig. 2에 나타내었다. 측정된 PL 스펙트럼으로부터 Gaussian 피팅된 내부 성분을 적분함으로써 QD1, QD2 및 WL의 발광세기를 QD1과 비교하여 Fig. 3에 도식하였다. 만약 양자점 신호인 QD1과 QD2가 단일크기 분포에 의한 바닥상태와 여기상태에 의한 발광이라면,

여기광 세기가 증가함에 따라 상태채움 효과(state filling effect)에 의해 QD1보다 QD2의 세기 증가가 더욱 크게 나타날 것이다. 반면에 이중크기 분포일 경우 QD1과 QD2의 세기 증가는 거의 유사한 형태로 나타날 것이다. 그러나 그림과 같이 가장 낮은 여기광 세기인  $0.076 \text{ W/cm}^2$ 에서도 QD2의 신호가 관측되어지며, 여기광 세기가 증가함에 따라 QD2/QD1의 세기 비는 다소 감소하여 나타났다. 이는 단일크기 분포에 의한 발광형태가 아님을 의미하며, 이러한 변화는 이중 양자점계(double quantum dot system)의 양자점간 결합된(coupled quantum dots; CQDs) 형태로 추정된다. 높은 dot 밀도를 가지며, 서로 다른 크기 분포로 형성된 양자점에서 dot사이의 거리가 약  $50 \text{ \AA}$  이하인 경우 dot간의 운반자 투과가 가능하다. 여기광 세기가 증가함에 따라 QD1의 세기가 QD2 보다 증가된 것은 상대적으로 낮은 준위를 가지는 QD1으로 운반자 이동이 일어난 것으로 추정되며, 이러한 결과는 QD1과 QD2가 이중크기 분포임을 확인 할 수 있다.

서로 다른 크기 분포의 활성화 에너지를 조사하기 위하여 PL 온도 의존성을 Fig. 4에 삽입하여 나타내었다. 16 K 저온에서 양자점과 GaAs의 중첩된 신호는 온도가 증가함에 따라 서로 분리되면서 양자점 신호는 빠르게 감소되어 상온에서는 거의 관측되지 않았다. 그리고 Fig. 4는 16 K에서 측정된 각 피크 에너지에 대한 각 온도의 상대적인 에너지 이동을 나타내며, 비교 데이터로 알려진 InAs의 온도에 따른 띠 간 전이ener지를 실선으로 표

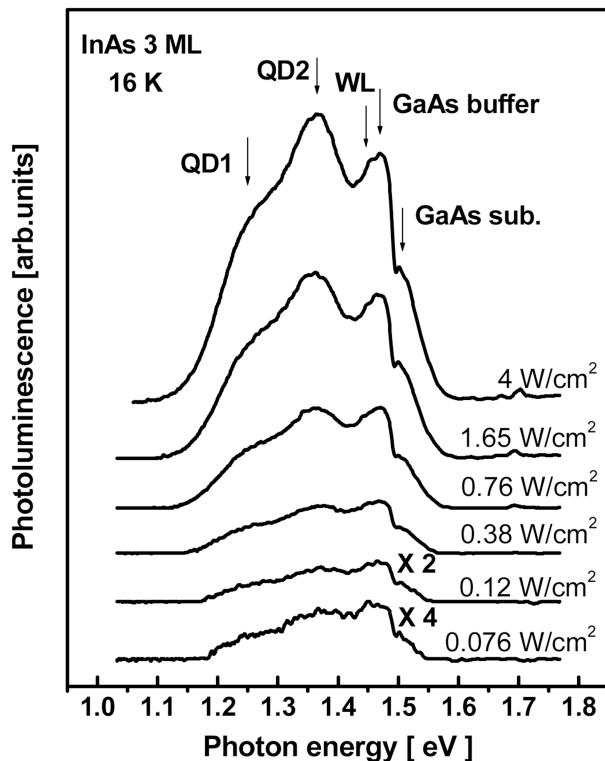


Fig. 2. The excitation power dependence PL spectra for InAs 3 ML.

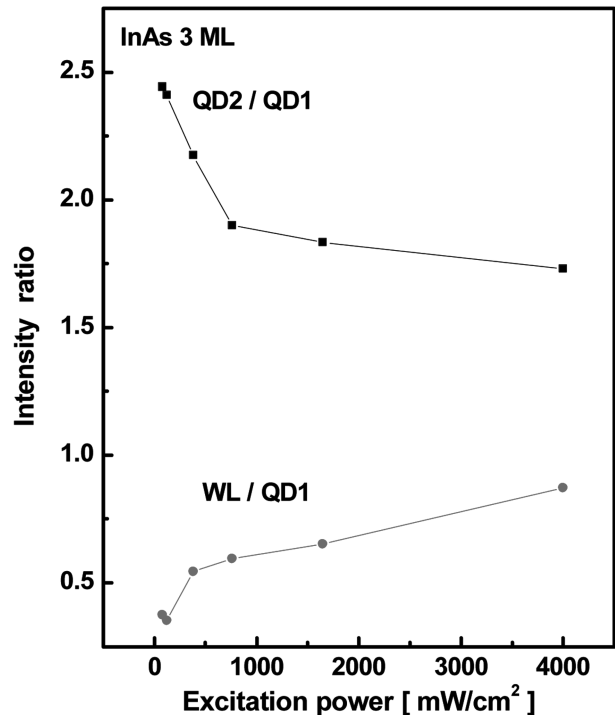


Fig. 3. The intensity ratio of QD2 transition to QD1 and WL transition.

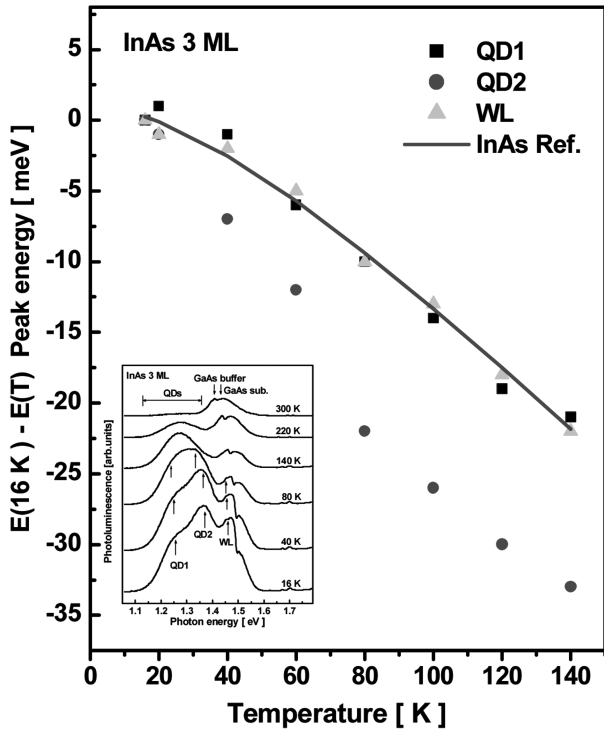


Fig. 4. The temperature dependence of peak energies for 16 K.

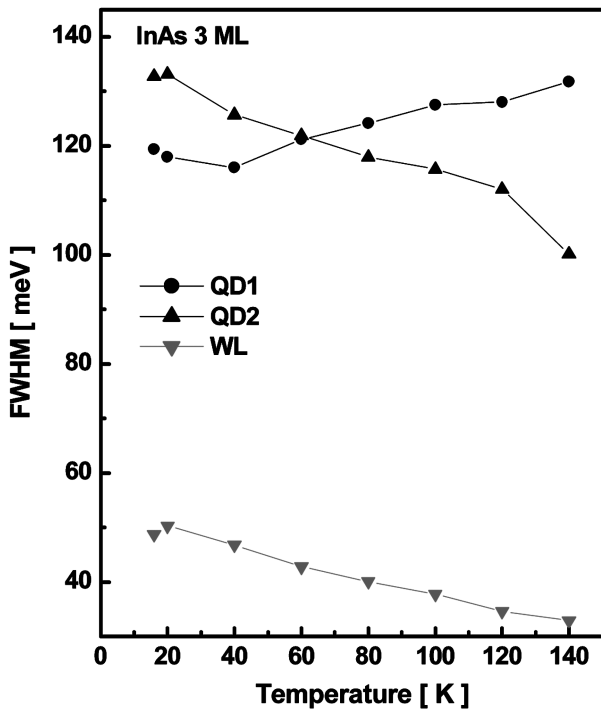


Fig. 5. The full width of a half maximum(FWHM) with temperature.

시하였다.<sup>12)</sup> 양자점 및 WL는 그 구성 물질이 InAs로 온도에 따른 거동은 InAs의 경우와 거의 유사한 반면 QD2의 피크 에너지는 InAs보다 빠르게 저 에너지로 이동하

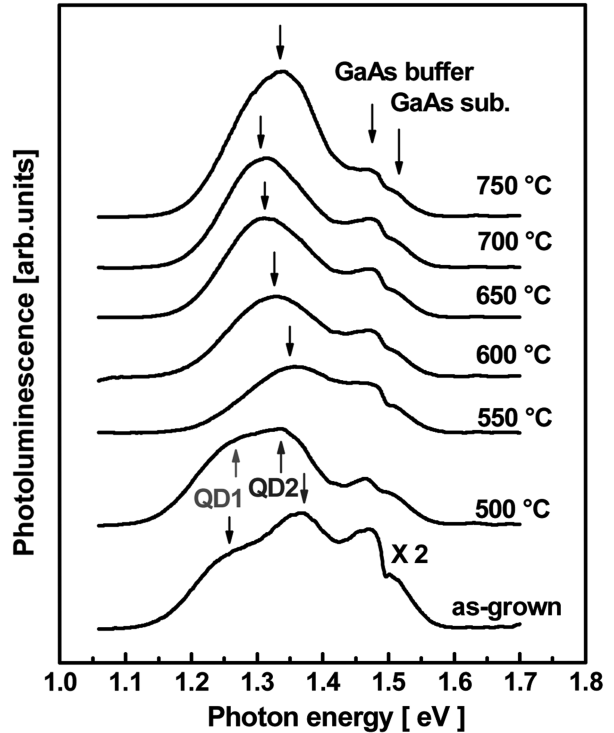


Fig. 6. The PL spectra of InAs 3 ML sample, as a function of annealed temperature from 450 °C to 750 °C.

였다. 이러한 비이상적인 거동은 이중크기 분포의 양자점 사이의 간섭효과(coherent coupling effect)로 설명할 수 있다. 서로 다른 바닥상태를 가지는 dot에 구속된 운반자들이 열에너지 공급으로 운반자의 재분포가 일어나며, 상대적으로 바닥상태가 낮은 큰 크기의 dot으로 이동하면서 나타나는 결과이다.<sup>13,14)</sup> 이러한 비이상적인 특징은 Fig. 5의 각 전이신호의 온도에 따른 반치폭의 변화에서도 관측되며, 온도가 증가함에 따라 QD1의 반치폭의 증가는 QD2에서 QD1으로 운반자 유입이 일어남을 의미한다. 이러한 결과로부터 50 nm 두께의 얇은 AlAs의 장벽은 투과효과가 일어날 수 있으며, InAs 성장 두께가 2와 3 ML인 시료에서 이중크기 분포로 형성된 서로 다른 크기 분포 사이의 간섭효과가 일어남을 알 수 있다.

Porsche 등<sup>15)</sup>과 Bansal 등<sup>16)</sup>이 보고한 바에 따르면, 낮은 성장률(growth rate)과 높은 성장온도가 이중크기 분포의 형성 원인으로 작용한다. 따라서 성장률을 높이고 낮은 온도에서 성장할수록 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

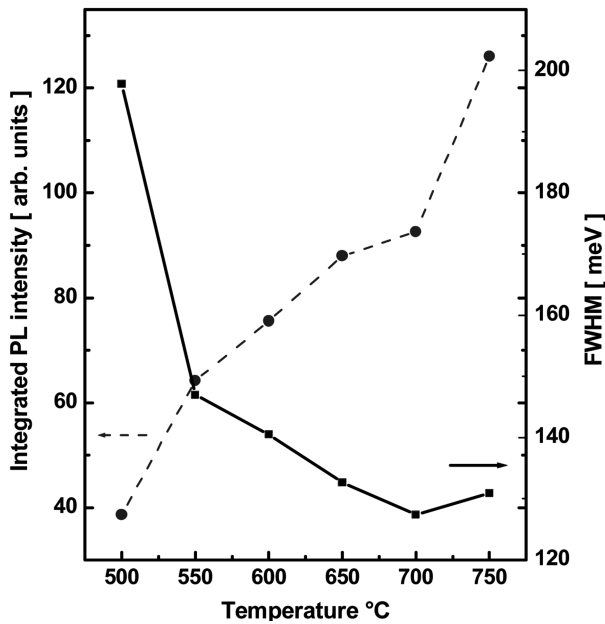


Fig. 7. The integrated PL intensity and FWHM as a function of annealed temperature from 500 °C to 750 °C.

양자점 소자의 광학적 효율을 저하시킬 수 있다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 본 논문에서는 이중크기 분포로 형성된 시료를 열처리(thermal treatment)를 한 후 그 발광 특성을 조사하였다.

Fig. 6는 각각 500~750 °C 온도에서 3분간 열처리 후 16 K에서 측정한 PL 스펙트럼이다. InAs/AlAs 구조의 시료에서 열처리 동안 표면으로부터 As의 방출을 방지하기 위하여 반절연된 GaAs 웨이퍼를 이용하여 face-to-face 법으로 수행하였다. 그림에서 열처리 전의 이중크기의 QD1과 QD2의 피크 에너지는 500 °C에서 열처리 후 각각 1.271과 1.381 eV로 각 피크의 중심 에너지 쪽으로 이동하면서, 열처리 전과 비교하여 양자점 신호가 약 2배 증가하였다. 열처리 온도가 550 °C에서부터 이중크기 분포의 특징이 사라지고 단일 양자점 신호가 나타나면서, 온도가 증가함에 따라 피크는 저 에너지로 이동하면서 발광 세기가 증가하였다. 이러한 변화는 크게 두 가지로 설명된다. 우선 첫째로 500 °C 이상에서 열처리 후 양자점의 발광 세기 증가는 낮은 온도에서 성장된 덮개층에 존재하는 비방사재결합 센터의 결함들이 열처리로 인해 감소되어 광학적 효율이 증가된 결과로 볼 수 있다. 그 다음으로 In과 Al 원자의 내부 확산(inter diffusion)으로 인한 InAs/AlAs 구조에서 In(Al)As/(In)AlAs의 구조적 변화에 의한 dot 크기의 재분포 과정이다. 열처리 후 InAs에서 InAlAs 양자점이 되는 과정은 Al의 확산이 커질수록 고 에너지 쪽의 발광 피크가 나타난다.<sup>17)</sup> 그러나 그림에서와 같이 550~700 °C의 피크가 저 에너지로 이동하는 현상은 Al의 내부 확산에 의한 양자점의 띠 간격

에너지의 증가 보다 AlAs 장벽층(matrix layer)으로 In 원자의 내부 확산이 표면 에너지를 변화시켜 응력(strain)이 완화되면서 dot의 크기가 전체적으로 커지는 요소가 더 크게 작용한 것으로 추정된다. InAlAs는 InAs과 AlAs의 격자상수 차이 값을 가지며, InAs 양자점의 Al 확산과 AlAs 기반층의 In 확산이 경계면의 격자 불일치를 완화시켜 응력이 완화된다. 열처리 온도에 따른 발광 세기와 반치폭을 Fig. 7에 나타내었다. 그림에서와 같이 열처리 온도가 증가할수록 반치폭은 감소하고, 발광 세기는 증가하였다. 반치폭의 감소는 dot의 크기 분포가 균일화됨을 의미하며, 광학적 효율의 증가를 나타낸다. 이 결과로부터 이중크기로 분포된 양자점은 열처리에 의해 dot의 크기가 균일하게 재분포되어 광학적 효율을 증가시킬 수 있다.

#### 4. 결 론

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

1. 16 K에서 PL 측정결과 약 1.25(QD1), 1.37(QD2) eV에서의 피크는 이중크기(bimodal) 분포에 의한 바닥상태 발광 신호이며, 그리고 약 1.46 eV에서 관측된 신호는 wetting layer(WL) 신호이었다.

2. AlAs 장벽 에너지 보다 낮은 여기 광원에서 양자점의 신호가 GaAs 완충층 및 기판 신호 보다 크게 나타난 것은 GaAs 층에서 생성된 운반자가 약 50 nm의 얇은 AlAs 장벽을 투과하여 InAs 양자점에 기여하기 때문이다.

3. 열처리 온도가 증가함에 따라 양자점 신호의 반치폭은 감소하고 발광 세기는 증가하였으며, GaAs와 증착된 WL의 신호가 저 에너지로 이동되었다. 이는 열처리 후 InAs WL와 AlAs층 사이에 Al과 In의 내부 확산에 의해 양자점의 크기가 균일하게 재 분포되고, WL의 임계 두께가 증가하였음을 나타낸다.

#### 참 고 문 헌

1. A. G. Cervantes, Z. R. Álvarez, M. L. López, I. Koudriavtsev and V. M. Sánchez-Reséndiz, *Appl. Surf. Sci.*, **255**, 4742 (2009).
2. A. Nasr, *Optics & Laser Technology*, **41**, 345 (2009).
3. H. J. Meng, J. Lu, L. Chen, P. F. Xu, J. J. Deng and J. H. Zhao, *Phys. Lett. A*, **373**, 1379 (2009).
4. S. Ganapathy, M. Kurimoto, P. Thilakan, K. Uesugi, I. Suemune, H. Machida and N. Shimoyama, *J. Appl. Phys.*, **94**, 4871 (2003).
5. 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).
6. A. O. Kosogov, P. Werner and U. Gosele, *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 3072 (1996).
  7. R. Leon, S. Fafard, P. G. Piva, S. Ruvimov and Z. L. Weber, *Phys. Rev. B*, **58**, R4262 (1998).
  8. E. K. Kim, J. S. Kim, K. Park, E. Yoon and S. K. Noh, *J. Korean Phys. Soc.* **46**, S117 (2005).
  9. 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).
  10. D. Leonard, K. Pond, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B*, **50**, 11687 (1994).
  11. D. Bimberg, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, 1311 (1996).
  12. S. Tiwari, *Compound Semiconductor Device Physics*, p.378, Academic Press, Boston, (1992).
  13. R. Songmuang, S. Kiravittaya, M. Sawadsaringkarn, S. Panyakeow and O. G. Schmidt, *J. Cryst. Growth*, **251**, 166 (2003).
  14. L. Brusaferrri, S. Sanguinetti, E. Grilli, M. Guzzi, A. Bignazzi, F. Bogani, L. Carraresi, M. Colocci, A. Bosacchi, P. Frigeri and S. Franchi, *Appl. Phys. Lett.*, **69**(22), 3354 (1996).
  15. J. Porsche, A. Ruf, M. Geiger and F. Scholz, *J. Cryst. Growth*, **195**, 591 (1995).
  16. B. Bansal, M. R. Gokhale, A. Bhattacharya and B. M. Arora, *J. Cryst. Growth*, **298**, 586 (2007).
  17. S. I. Jung, J. J. Yoon, H. J. Park, Y. M. Park, M. H. Jeon, J. Y. Leem, C. M. Lee, E. T. Cho, J. I. Lee, J. S. Kim, J. S. Son, J. S. Kim, D. Y. Lee and I. K. Han, *Physica E*, **26**, 100 (2005).