

InAs/GaAs 양자점의 단전자-정공 재결합 연구

이주인* · 임재영 · 서정철

한국표준과학연구원, 대전 305-600
(논문접수일 : 2000년 8월 25일)

Studies on single electron-hole recombination in InAs/GaAs quantum dots

Joo In Lee,* Jae-Young Leem, and J.-C. Seo

Korea Research Institute of Standards and Science, Taejeon 305-600
(Received August 25, 2000)

요 약

InGaAs/GaAs 초격자 구조들 사이에 InAs/GaAs 양자점을 MBE로 성장하고 광특성을 측정한 결과 매우 균일한 양자점을 얻을 수 있었다. Self-consistent한 이론 계산으로부터 얻은 p-i-n 구조의 최적 조건으로 단일광자구조를 성장하고 단일광자소자를 e-beam lithography를 이용하여 제작하였다. 전기적 특성인 I-V 곡선에서 나타난 전기 이력현상으로부터 단일 전자와 단일 정공이 다른 전압에서 투과하여 단일 전자-정공 재결합 현상이 나타나고 있음을 확인하였다.

Abstract

InAs/GaAs quantum dots between InGaAs/GaAs superlattices were grown by MBE. The quantum dots size is shown to be very uniform by measuring photoluminescence spectra of quantum dots. Single photon structures based on self-consistent calculation were grown and single photon devices were fabricated by e-beam lithography. The electrical hystereses of I-V curves for single photon devices would result from single electron-hole recombination, where the resonant-tunneling voltages of electron and hole are different.

1. 서 론

1989년 John Scott-Thomas [1]는 선폭이 70nm인 Si 양자선(quantum wire)에서 gate 전압에 따라 전도도가 진동하는 신호를 관측하였다. 우연히 발견한 전도도의 진동이 바로 전자 하나가 투과할 때마다 나타나는 단전자 투과(single electron tunneling) 현상에서 비롯되었음을 알게 되었다. 즉 선폭이 작은 Si 양자선에 우연히 존재하는 두 개의 불순물은 전자의 흐름을 막는 포텐셜 장벽을 형성하여 양자선 내에 양자점을 만들게 된다. 우연히 형성된 양자점의

불연속 준위와 양자선의 Fermi 준위가 gate 전압에 의하여 일치할 때 전자 하나가 양자점으로 투과된다. 전자 하나가 양자점으로 투과되면 단전자의 charging energy($e^2/2C$)만큼 양자점 에너지 준위가 올라가게 되고 다른 전자가 연속해서 양자점으로 유입되는 것을 막아준다. 이것이 Coulomb blockade 현상이다. 단전자 투과 현상이 발견된 이후 10년 동안 많은 기초연구와 응용연구가 진행되어 최근에는 단전자 트랜지스터(single electron transistor: SET) 개발 단계까지 발전되었다 [2].

최근에 Imagoglu와 Yamamoto [3]는 p-i-n GaAs/AlGaAs

* E-mail : jilee@kriss.re.kr

구조에서 gate 전압을 조절하여 단전자(single electron) 뿐만 아니라 단정공(single hole)을 투과하여 단일 광자(single photon)를 생성시키기 위한 이론적인 계산을 수행하였다. 즉, gate 전압이 V_0 일 때 단전자를 양자점 내에 투과시키고 gate 전압이 $V_0 + \Delta V$ 일 때 단정공을 투과시키어 단전자와 정공이 재결합(recombination)하여 단일 광자를 생성하는 원리이다. 이 계산을 실험적으로 검증한 연구 결과가 발표되지 않다가 Fujiwara [4]가 Si SET에서 단전자-정공 재결합에 의한 전도도 진동을 우연히 관측하게 되었다.

본 연구에서는 반도체 성장중에 자발적으로 형성되는(self-assembled) p-i-n InAs 양자점(quantum dots) 구조를 이용하여, 단일 광자를 생성시키기 위한 단전자-정공 재결합을 예측하고, 이를 전기적 신호로 측정하여 앞으로 단일 광자를 인위적으로 제어하기 위한 선행 연구를 수행하였다.

단전자 투과 및 단일 광자 생성을 위해서는 반드시 양자점 구조를 갖는 저차원 계가 필요하다. 왜냐하면 양자점과 같이 정전용량(capacitance)이 작은 구조에서만 Coulomb blockade 현상이 가능하기 때문이다. 단전자 투과에서는 양자점의 계면 및 표면에 결합에 큰 영향을 받지 않지만 단일 광자 생성에서는 치명적인 영향을 미치게 된다. 즉, 양자점의 계면 및 표면 결합은 단전자-정공의 발광 재결합(radiative recombination)보다는 비발광 재결합(nonradiative recombination)이 지배적인 효과를 주기 때문이다. 따라서 단일 광자 제어를 위해서는 광학적 특성이 아주 우수한 양자점을 제작해야하는 것이 필수적이다.

두 물질간의 격자부정합을 이용하여 양자점을 형성하는 self-assembled 양자점은 반도체 에피층을 성장하는 중에 양자점이 만들어지기 때문에 양자점의 계면에 결합이 거의 발생하지 않아 광학적 특성이 우수한 양자점을 얻을 수 있다. [5,6] 최근들어, InAs 및 GaAs 사이의 격자부정합을 이용하여 InAs 양자점을 성장하고 이에대한 광학적 특성 및 광 소자 응용연구가 활발히 진행되고 있고, [7,8] 양자점 레이저 다이오드까지 개발하였다. [9]

본 연구에서는 단일 광자 제어를 위한 시료로 InAs/GaAs 양자점을 이용하였다. InAs 양자점은 많은 장점을 가지었음에도 불구하고 양자점 크기가 균일하지 못하여 많은 양자점들의 에너지 준위가

넓은 분포(약 70 meV)를 이루게 되어 실제로 소자를 만드는데 문제가 되고 있다. 따라서 본 연구에서는 많은 시행착오를 거쳐 InAs 양자점을 성장하기 전에 $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ superlattice를 성장하면 이러한 에너지 준위 분포를 줄일 수 있는 결과를 얻었다. 그림 1에서 이러한 양자점 구조를 보여주고 있다.

그림 2는 앞서 설명한 InAs/ $In_{0.1}Ga_{0.9}As$ 양자점의 photoluminescence(PL) 결과를 보여준다. PL 실험은 Ar^+ 레이저를 여기광으로, 냉각형 Ge 다이오드를 검출기로 이용하였다. 또한 측정시 시료는 cryostat에 부착하여 12 K을 유지하였다. 그림 2에서 볼 수 있듯이 PL 스펙트럼은 두 개의 형광으로 중첩되어 있는데 하나는 양자점의 기저상태(ground state)에서 기인하고 다른 하나는 여기상태(excited state)에서

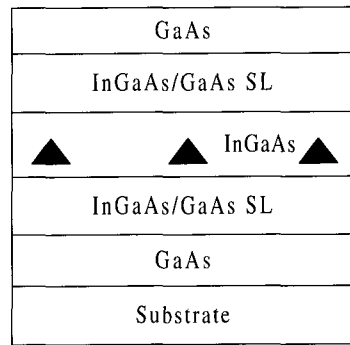


Fig. 1 Schematic diagram of InAs/GaAs QD structures.

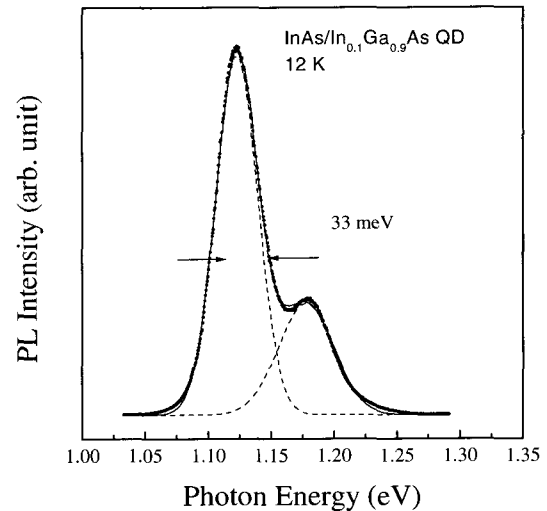


Fig. 2 PL spectra of InAs/GaAs QD. The linewidth of ground state is 33 meV.

기인한다. 기저상태의 FWHM은 33 meV임을 알 수 있다. 이 결과는 기존의 다른 연구그룹에서 보여준 70 meV 결과와 비교할 때 양자점 크기가 매우 균일하게 성장되었음을 알 수 있다. 여기상태의 FWHM은 45 meV로 기저상태의 FWHM 보다 넓게 나타나고 있다. 이것은 여기상태의 에너지가 장벽 에너지에 가까워짐에 따라 양자점 크기에 따른 에너지 준위 변화가 더욱 심해지고 있음을 보여준다. 결과적으로 양자점의 크기를 상당히 균일하게 성장할 수 있어 단전자-정공 재결합 연구에 InAs 양자점 시료를 응용할 수 있게 되었다.

p-i-n형 InAs 양자점 구조의 밴드 및 에너지 준위 계산은 실제로 p-i-n형 InAs 양자점의 성장을 위한 설계 - 도핑농도, 에피층 두께 등등 - 를 위하여 매우 중요한 자료를 제공한다. 하지만 양자점에 대한 Schrödinger 함수를 풀기 위해서는 3차원 좌표를 사용해야하기 때문에 실제로 계산하기가 매우 어렵다. 따라서 이를 위해서 density functional theory 및 grid method 등 이론물리에 전문적인 지식이 필요로 한다. 따라서 본 연구에서는 양자점 구조의 Poisson's equation과 Schrödinger's equation을 일차원으로 전개하여 문제를 단순화하여 iteration 방법으로 self-consistent 한 계산을 수행하였다.

Poisson's equation으로부터

$$-\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = \frac{q}{\epsilon\epsilon_0} [p(z) - n(z) + N_D(z) - N_A(z)] \quad (1)$$

여기서 N_D 와 N_A 는 각각 donor와 acceptor의 농도이다.

또한 Schrödinger's equation은

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d}{dz} \frac{1}{m_s^*(z)} \frac{d}{dz} + V_s(z) - E_{si} \right] \psi_{si} = 0, \quad s=e,h \quad (2a)$$

$$V_e(z) = V_e^b(z) + V_H(z) \quad (2b)$$

$$V_h(z) = V_h^b(z) - V_H(z) \quad (2c)$$

로 표현된다. 여기서 $V_H(z)$ 는 Hatree potential이다.

양자점의 크기를 5 nm, donor 도핑 농도를 $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, acceptor 도핑농도를 $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 로 하였을 때 InAs/

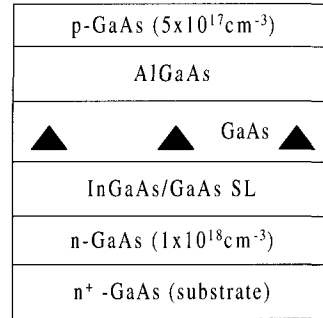


Fig. 3 Schematic diagram of p-i-n InAs/GaAs QD structures.

GaAs 양자점에서의 전자와 정공의 기저상태 에너지 준위는 n형 GaAs conduction band와 p형 GaAs valence band의 최저 에너지 보다 높게 위치하는 것으로 계산되었다. 따라서 단전자와 단정공을 양자점으로 투과시키기 위해서는 p-i-n형 시료에 순방향으로 전압을 걸어주어야 단전자-정공 재결합 현상을 측정할 수 있다. 하지만 p-i-n 시료에 순방향으로 전압을 인가하면 전류가 많이 흐르게 되므로 p형 GaAs 층과 n형 GaAs 층 사이에 부도체(insulator) 역할을 하는 장벽층(예: AlGaAs)을 성장시켜주어야만 순방향으로 인가된 전압에 의하여 흐르는 전류를 막을 수 있고 양자점으로 투과되는 전류를 측정할 수 있다.

그림 3은 위 계산 결과를 토대로 설계한 p-i-n형 InAs 양자점 구조를 보여준다. 순방향 전류를 막기 위하여 AlGaAs 장벽층을 p형과 n형 GaAs 사이에 두었고 양자점 크기를 균일하게 성장하기 위하여 InGaAs/GaAs superlattice 층을 양자점을 성장하기 전에 성장시키는 구조로 되어있다.

그림 4는 성장된 시료에 e-beam lithography 기술과 절연층 증착 기술을 이용하여 제작된 단일광자 소자(single photon devices)의 개략도를 보여준다. 아래 절연층인 SiO₂에 지름 20 μm 정도의 구멍을 내어 아래 금속층과 양자점 시료가 접합할 수 있도록 하여 아래 금속층에 전압을 인가하였을 때 전류가 흐르도록 하였다. 아래 금속층은 전류를 측정하는 전극이고 위의 금속층은 시료에 전압을 순방향으로 인가할 때 사용되는 전극이다. 두 금속층은 역시 SiO₂로 절연된다.

그림 5는 상온에서 20 μm 지름을 갖는 단일광자 소자에 대한 I-V 실험 결과를 보여준다. 여러 개의

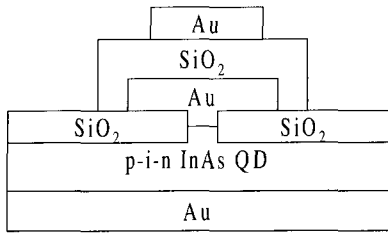


Fig. 4 Schematic diagram of single photon devices. The contact diameter between Au and QD sample is $20\ \mu\text{m}$.

단일전자소자를 만들어 측정한 I-V 곡선은 동일하게 나타나고 있음을 알 수 있었다. 전압을 증가시킬 때와 감소시킬 때 다른 경로를 따르는 전기 이력현상(hysteresis)을 보여주고 있는데 이것은 인가된 전압에 의하여 이중 접합부분에 전하가 충전되거나 방전되기 때문에 나타나는 현상이다.

그림 6는 그림 5의 결과를 전압에 대한 dI/dV 곡선을 보여주고 있다. 전압을 증가시킬 때 0 V 부근에서 dI/dV 가 급격히 증가하는 것을 볼 수 있는데, 이것은 초기 전압을 인가할 때 단일광자소자에 전하가 충전되면서(charging) 나타나는 현상이다. 또한 전압이 증가할 때는 4 V 부근에서 dI/dV 값이 감소하였다 증가하는 변곡점이 형성되어 있으나, 전압을

감소시킬 때는 증가시킬 때와는 달리 1 V 부근에서 변곡점이 나타나고 있음을 알 수 있다. 이 현상은 이미 그림 5에서 예측되었던 현상으로, 양자점에서의 전자와 정공의 투과 현상으로 설명할 수 있다. 즉, 전압을 증가할 때 계산에 의하면 먼저 단일 정공이 양자점으로 투과하여(1 V 부근) 양자점 내에 더 이상의 정공을 투과하지 못하게 Coulomb blockade를 형성하게 되고, 전압이 더욱 증가하게 되면 역시 마찬가지로 단일 전자가 투과하게 된다.(4 V 부근) 이때 투과된 단일 전자와 정공은 양자점 내에서 구속되어 exciton을 형성하고, 곧이어 단일 전자-정공 재결합을 하여 전하가 사라지게 된다. 이러한 현상은 곧 단일광자소자의 정전용량 (C) 값을 변화시키는 결과를 주게되어 $dI/dV=C/t$ 로부터 dI/dV 값이 4 V 부근에서 감소하였다가 증가하는 현상을 보여주게 된다. 반대로 전압을 10 V에서부터 감소시킬 때는 먼저 단일 전자가 투과하게 (4 V 부근) 되고 다음으로 단일 정공이 투과하게 (1 V 부근) 되어 dI/dV 가 변화하는 변곡점은 1 V 부근에서 나타나게 된다. 그림 5에서 보여준 전기 이력현상은 양자점 내에 단일 전자와 정공이 투과하여 이의 재결합 과정에서 나타난다는 것을 알 수 있다.

본 연구에서는 InGaAs/GaAs 초격자 구조를 사이

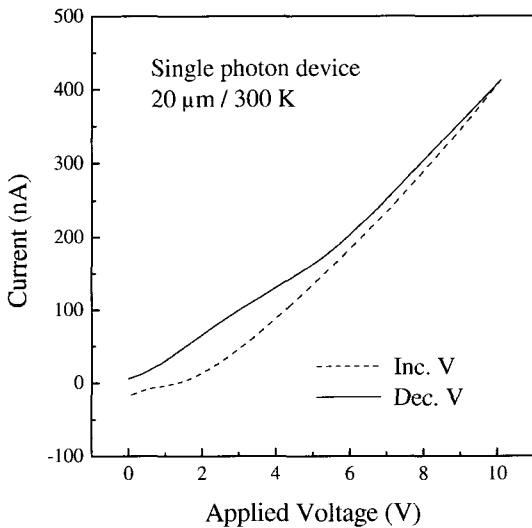


Fig. 5 The I-V curves of single photon devices. Electrical hysteresis are observed.

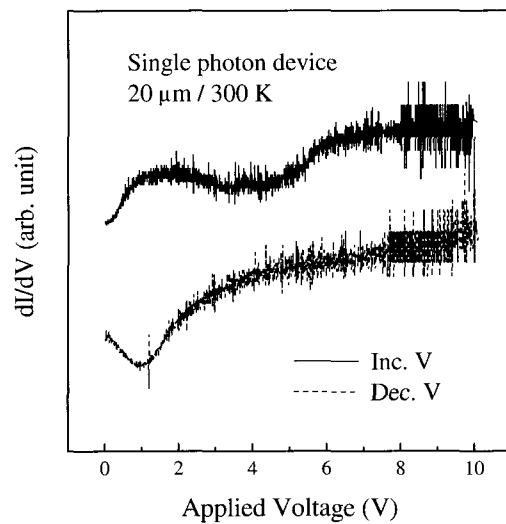


Fig. 6 Plots of applied voltage vs. dI/dV . The voltage correspondent to dI/dV minimum between increasing and decreasing voltage is different.

에 InAs/GaAs 양자점을 성장하고 p-i-n 구조의 단일 광자구조를 성장하였다. PL 측정 결과 저온에서 양자점의 스펙트럼 반치폭이 33 meV로 매우 낮은 값을 주었는데 이는 양자점이 매우 균일하게 성장되었음을 보여주고 있다. 단일광자소자를 e-beam lithography를 이용하여 제작하고 전기적 특성인 I-V 곡선에서 나타난 전기 이력현상으로부터 단일 전자와 단일 정공이 다른 전압에서 투과하여 단일 전자-정공 재결합 현상이 나타나고 있음을 확인하였다.

참 고 문 헌

- [1] J. H. F. Scott-Thomas, S. B. Field, M. K. Kastner, H. I. Smith, and D. A. Antoniadis, Phys. Rev. Lett. **62**, 583 (1989).
- [2] M. A. Kastner, Rev. of Modern Phys. **64**, 849 (1992).
- [3] A. Imamoglu, and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **72**, 210 (1994).
- [4] A. Fujiwara, Y. Takahashi, and K. Murase, Phys. Rev. Lett. **78**, 1532 (1997).
- [5] J. I. Lee, H. G. Lee, E. Shin, S. Yu, D. Kim, G. Ihm, Appl. Phys. Lett. **70**, 2885 (1985).
- [6] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars, and P. M. Petroff, Appl. Phys. Lett. **63**, 3203 (1993).
- [7] S. Sauvage, P. Boucaud, F. H. Julien, J. M. Gerard, and V. Thierry-Mieg, Appl. Phys. Lett. **71**, 2785 (1997).
- [8] G. Yusa and H. Sakaki, Appl. Phys. Lett. **70**, 345 (1997).
- [9] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, R. Heitz, L. Eckey, J. Christen, J. Bohrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, J. Heidenreich, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alverov, Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).