

InAs/GaAs 양자점의 발광특성에 대한 InGaAs 캡층의 영향

권세라^a · 류미이^{a*} · 송진동^b

^a강원대학교 물리학과, 춘천 200-701

^b한국과학기술연구원 다원물질융합연구소 광전융합시스템연구단, 서울 136-791

(2012년 9월 28일 받음, 2012년 11월 26일 수정, 2012년 11월 27일 확정)

Migration-enhanced molecular beam epitaxy법을 이용하여 GaAs 기판에 성장한 InAs 양자점(quantum dots: QDs)의 광학적 특성을 PL (photoluminescence)과 time-resolved PL을 이용하여 분석하였다. 시료 온도, 여기 광의 세기, 발광 파장에 따른 InAs/GaAs QDs (QD1)과 In_{0.15}Ga_{0.85}As 캡층을 성장한 InAs/GaAs QDs (QD2)의 발광특성을 연구하였다. QD2의 PL 피크는 QD1의 PL 피크보다 장파장에서 나타났으며, 이것은 InGaAs 캡층의 In이 InAs 양자점으로 확산되어 양자점의 크기가 증가한 것으로 설명된다. 10 K에서 측정된 QD1과 QD2의 PL 피크인 1,117 nm와 1,197 nm에서 PL 소멸시간은 각각 1.12 ns와 1.00 ns이고, 발광파장에 따른 PL 소멸시간은 PL 피크 근처에서 거의 일정하게 나타났다. QD2의 PL 소멸시간이 QD1보다 짧은 것은 QD2의 양자점이 커서 파동함수 중첩이 향상되어 캐리어 재결합이 증가한 때문으로 설명된다.

주제어 : InAs, 양자점, 포토루미네선스, 시간분해 포토루미네선스

I. 서 론

양자점(quantum dots, QDs)과 양자선(quantum wires)과 같은 저차원 양자 구조의 특성을 레이저 다이오드(laser diode), 발광 다이오드(light emitting diode), 적외선 검출기, 태양전지, 단전자 트랜지스터(single electron transistors) 등의 소자에 응용하기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다 [1-6]. InAs 양자점은 표면에너지가 작은 기판 위에 살창 상수가 큰 물질을 증착시켜 살창 불일치(lattice mismatch)에 의한 응력에너지(misfit strain, 7.2%)를 완화하기 위해 양자점이 자발적으로 형성되는 것을 이용한 S-K (Staranski-Krastranew) 성장모드를 이용하여 성장한다 [7-13]. 그러나 S-K 성장모드를 이용한 자발형성 양자점은 양자점의 크기, 모양, 균일도, 공간적 밀도 등을 제어하기가 힘들고, 양자점의 높이가 지름에 비해 작아 광학적 특성이 좋지 않다. 이러한 자발형성 양자점의 광학적 특성을 향상하기 위해 III/V족 물질의 성장 거동을 제어하거나 응력층(strained layer)을 이용한 양자점의 형성을 제어한 연구결과들이 발표되었다 [14-18]. Lee et al. [15]은 InGaAs 층을 InAs 양자점과 InAlGaAs 층 사이에 성장하여

양자점의 크기/모양 및 밀도를 조절하여 광학적 특성이 향상되었다고 보고하였다. 또한 InAs 양자점 성장 동안에 In 공급을 일정시간 차단함으로써 양자점의 크기와 밀도 조절할 수 있음을 보였다 [14]. Cho et al. [17]은 MEMBE (migration-enhanced molecular beam epitaxy)법으로 성장한 InAs 양자점의 크기, 균일도, AR (aspect ratio), PL (photoluminescence) 특성 등이 conventional MBE법으로 성장한 양자점보다 크게 향상된 결과를 보고하였다. 본 연구에서는 MEMBE법으로 성장한 InAs/GaAs 양자점 시료와 InGaAs 캡층을 성장한 InAs/GaAs 양자점 시료의 광학적 특성을 PL과 TRPL (time-resolved PL) 측정을 이용하여 분석하였다.

II. 실험방법

InAs 양자점 시료들은 V80 MBE (molecular beam epitaxy) 장비를 이용하여 n-GaAs 기판 위에 성장하였다. Fig. 1(a)에 InAs 양자점의 구조를 나타내었다. 먼저 GaAs 버퍼층을 580°C에서 성장한 후, 같은 온도에서 Al_{0.3}Ga_{0.7}As 층과

* [전자우편] myryu@kangwon.ac.kr

GaAs 층을 각각 5 nm 두께로 5회 반복하여 성장하였다. 그 위에 20 nm의 GaAs layer를 성장한 후, InAs 양자점은 490°C에서 MEE (migration-enhanced epitaxy)법을 이용하여 성장하였다. Fig. 1(a)에 보여주듯이 InAs 양자점을 성장한 후, 7 nm의 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ 캡층과 25 nm의 GaAs 층을 성장하고, $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 층과 GaAs 층을 각각 5 nm 두께로 5회 반복하여 성장하였다. Fig. 1(b)는 MEE법을 도식화하여 나타내었다. In을 9.3초 공급하고 5초 차단한 후 As을 9초 공급하고 5초 차단해 주었으며, 이러한 과정을 3회 반복하여 InAs 양자점을 성장하였다. 본 연구에서는 InGaAs 캡층을 성장하지 않은 InAs 양자점 시료(QD1)과 InGaAs 캡층을 성장한 시료(QD2)의 특성을 분석하여 InGaAs 캡층의 영향을 연구하였다. InAs 양자점의 발광 특성을 분석하기 위해 PL과 TRPL 측정을 하였으며, 여기광원으로 각각 cw 다이오드 레이저($\lambda = 532 \text{ nm}$)와 펄스 다이오드 레이저($\lambda = 634 \text{ nm}$, pulse width = 50 ps)를 사용하였다. PL 신호는 NIR-PMT (Hamamatsu R5509-73) 검출기를 사용하여 측정하였다.

III. 실험결과 및 논의

Fig. 2(a)와 2(b)는 각각 저온(10 K)와 상온(300 K)에서 측정된 InAs 양자점 시료들의 PL 스펙트럼을 나타내었다. 10 K에서 QD1의 PL 피크는 1,117 nm에서 나타나고, 1,083 nm에 shoulder 피크가 측정되었다. 온도를 300 K로 증가

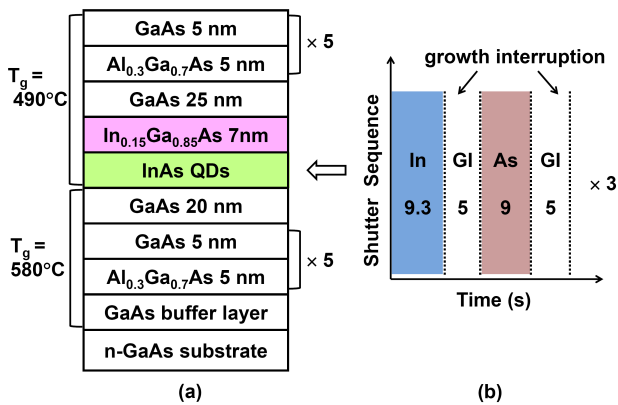


Figure 1. (a) Schematic diagram of InAs quantum dots (QD2) capped with $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ layer. (b) Illustration of a shutter sequence for the growth of InAs QDs by migration-enhanced molecular beam epitaxy method.

하였을 때 각각의 피크는 1,211 nm와 1,173 nm로 적색이동 (redshifted)하였다. QD2의 PL 피크는 10 K에서 1,197 nm와 1,136 nm에서 나타나고, 300 K에서는 각각 1,298 nm와 1,219 nm에서 나타난다. Fig. 2에 보여주듯이 QD1의 PL 세기가 10 K와 300 K에서 QD2보다 강하게 나타나고, QD2의 PL 피크는 QD1의 PL 피크보다 10 K와 300 K에서 각각 80 nm와 87 nm 장파장(적색이동)에서 나타난다. QD2의 PL 피크가 장파장에서 나타나는 것은 InGaAs 캡층으로부터 In이 InAs 양자점으로 확산되어 양자점의 크기와 WL (wetting layer) 두께가 증가한 것으로 설명할 수 있다. Dasika et al. [18]은 InGaAs alloy 버퍼층과 캡층을 성장하였을 때 In의 확산으로 InAs 양자점의 크기와 WL의 두께가 증가하고 양자점 밀도가 증가하는 메커니즘을 보고하였다.

온도에 따른 PL 피크 에너지의 변화를 Fig. 3(a)에 나타내었다. Fig. 2에서 보여주듯이 QD1과 QD2의 PL 스펙트럼은 두 개 이상의 PL 피크들로 이루어져있다. 그러나 QD1은 Fig. 2에 나타난 두 피크의 온도에 따른 변화를 나타내었으

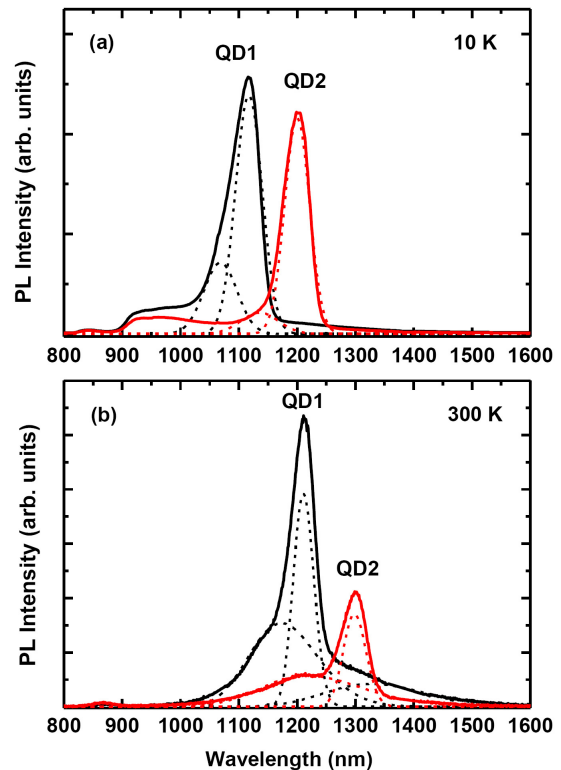


Figure 2. PL spectra of QD1 and QD2 measured at (a) 10 K and (b) 300 K. The Gaussian fitted peaks are also displayed (dotted lines).

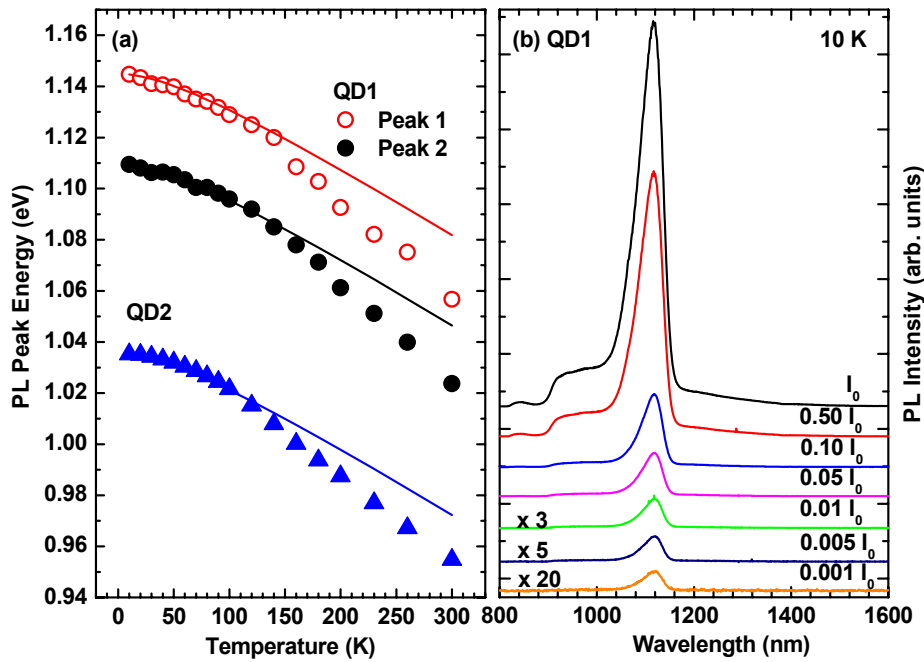


Figure 3. (a) Temperature–dependent PL peak energies of QD1 (circles) and QD2 (triangles). The solid curves are the calculated transition energies using Varshni equation with the parameters of bulk InAs. (b) Excitation power–dependent PL spectra of QD1 measured at 10 K. All spectra are shifted vertically for clarity.

며, QD2는 shoulder 피크의 세기가 약해서 main 피크만을 나타내었다. Gaussian peak fitting을 이용하여 구한 PL 피크 에너지를 나타냈으며, Fig. 3에서 실선은 Varshni 방정식 $[E_g(T) = E_g(0) - \alpha T^2 / (\beta + T)]$ 으로 계산한 결과를 나타내었다 [19]. Varshni 방정식에서 $E_g(T)$ 는 각 온도에서의 PL 피크 에너지, $E_g(0)$ 은 0 K에서 InAs의 밴드갭 에너지, α 와 β 는 fitting 변수들이다. Fig. 3에 나타낸 실선은 InAs 벌크에 대한 $E_g(0) = 0.417$ eV, $\alpha = 2.76 \times 10^{-4}$ eV/K, $\beta = 93$ K 값을 사용하여 계산한 후, 10 K에서 측정된 PL 피크 에너지와 일치하도록 이동하였다 [20]. Fig. 3(a)에서 보여주듯이 10 K에서 120 K까지는 PL 피크 에너지 변화가 InAs 벌크와 같은 경향을 보이지만 140 K 이상에서는 InAs 양자점의 PL 피크 에너지가 벌크 InAs보다 점차 빠르게 적색이동한다. 양자점의 빠른 적색이동은 온도가 증가함에 따라 상대적으로 크기가 작은 양자점의 캐리어가 큰 양자점의 캐리어보다 열적으로 쉽게 WL 또는 장벽으로 여기 되기 때문으로 설명된다. 100 K 이상 온도에서 InAs 벌크에 비해 InAs 양자점의 PL 피크의 빠른 적색이동 현상은 양자점 사이의 캐리어의 재분배 현상으로 보고되었다 [12–14].

Fig. 3(b)는 여기 광의 세기에 따른 QD1의 PL 스펙트럼

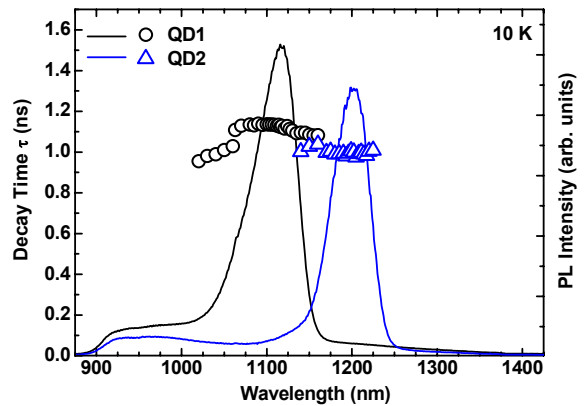


Figure 4. PL decay times of QD1 (circles) and QD2 (triangles) as a function of emission wavelength taken at 10 K. The PL spectra measured at 10 K are also displayed.

을 나타내었다. 여기 광의 세기를 0.001 I₀에서 I₀로 증가하였을 때, PL 피크 세기는 370배 증가하였으나 PL 피크 파장은 변화하지 않았다. Fig. 3(b)에서 보여주듯이 여기 광의 세기를 증가함에 따라 PL 세기는 선형적으로 증가하였으나, main 피크와 shoulder 피크의 상대적인 PL 세기는 거의 일정하여 PL 스펙트럼의 변화는 관찰되지 않았다. 이

결과는 단파장(높은 에너지)에 나타난 shoulder 피크가 main PL 피크의 여기 상태(excited state) 피크가 아니라 상대적으로 크기가 작은 양자점들에 의한 PL 피크인 것을 나타낸다. QD2의 여기 광의 세기에 따른 PL 스펙트럼도 QD1과 같은 결과를 보였다(not shown here).

10 K에서 측정한 QD1과 QD2의 발광파장에 따른 PL 소멸시간(decay time) τ 과 PL 스펙트럼을 Fig. 4에 나타내었다. 캐리어 소멸시간 τ 는 10 K에서 측정한 PL 소멸곡선을 단일지수함수인 $I(t) = A \exp(-t/\tau)$ 을 이용하여 얻었다. Fig. 4에 보여주듯이 QD1과 QD2의 PL 피크인 1,117 nm와 1,197 nm에서 PL 소멸시간은 각각 1.12 ns와 1.00 ns이고, PL 피크 근처에서 거의 일정하다. 이것은 양자점의 크기와 분포가 거의 일정하다는 것을 나타낸다. 양자점의 크기와 밀도에 따라 캐리어의 구속에너지, 파동함수의 중첩, 양자점 사이의 상호작용 등이 변화하므로 일반적으로 PL 소멸시간은 발광파장에 강하게 의존한다 [11–14]. 또한 QD2의 PL 소멸시간이 QD1보다 짧은 것은 InGaAs 캡층의 In이 확산되어 QD2의 양자점이 QD1보다 커서 전자와 양공 사이에 파동함수 중첩이 향상되어 캐리어의 재결합이 증가한 것으로 설명할 수 있다.

IV. 결 론

MBE를 이용하여 GaAs 기판에 MEE법으로 성장한 InAs 양자점의 광학적 특성을 PL과 TRPL을 이용하여 분석하였다. InAs/GaAs QDs (QD1)의 PL 피크는 10 K에서 1,117 nm에서 나타났다. InGaAs 캡층을 성장한 InAs/GaAs QDs (QD2)의 PL 피크는 약 80 nm 적색이동하여 1,197 nm에서 나타났다. 두 시료 QD1과 QD2의 PL 스펙트럼은 main PL 피크와 단파장 영역의 약한 shoulder 피크로 이루어졌다. 여기 광의 세기를 증가하였을 때 PL 세기는 선형적으로 증가하나, main 피크와 shoulder 피크의 상대적인 PL 세기는 일정함을 보였다. 이것은 shoulder 피크가 상대적으로 크기가 작은 양자점에 의한 피크임을 나타낸다. InGaAs 캡층을 성장한 QD2의 PL이 QD1보다 빠르게 소멸하였다. QD2의 PL 피크의 적색이동과 PL 소멸시간의 감소는 InGaAs 캡층의 In이 InAs 양자점으로 확산되어 양자점 크기의 증가와 이로 인한 캐리어의 재결합 증가로 기인한다.

감사의 글

이 논문은 2010년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(2009-0073699, 2010-0021555). 본 연구는 강원대학교 공동실험실습관의기기를 이용하여 수행되었음.

참고문헌

- [1] M. Asada, Y. Miyamoto, and Y. Suematsu, *IEEE J. Quantum Electron.* **22**, 1915 (1986).
- [2] Y. Nakata, K. Mukai, M. Sugawara, K. Ohtsubo, H. Ishikawa, and N. Yokoyama, *J. Crystal Growth* **208**, 93 (2000).
- [3] A. D. Stiff, S. Krishna, P. Bhattacharya, and S. Kennerly, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 421 (2001).
- [4] A. Fiore, U. Oeserle, R. P. Stanley, and M. Ilegems, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **12**, 1601 (2000).
- [5] D. Zhou, P. E. Vullum, G. Sharma, S. F. Thomassen, R. Holmestad, T. W. Reenaas, and B. O. Fimland, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 083108 (2010).
- [6] H. W. Shin, J. W. Choe, J. O. Kim, S. J. Lee, C. S. Kim, and S. K. Noh, *J. Korean Vac. Soc.* **20**, 35 (2011).
- [7] D. Sreenivasan, J. E. M. Haverkort, T. J. Eijkemans, and R. Nötzel, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 112109 (2007).
- [8] S. Kim, D. K. Oh, P. W. Yu, J.-Y. Leem, J. I. Lee, and C. R. Lee, *J. Crystal Growth* **261**, 38 (2004).
- [9] L. M. Kong, J. F. Cai, Z. Y. Wu, Z. Gong, Z. C. Niu, and Z. C. Feng, *Thin Solid Films* **498**, 188 (2006).
- [10] J. S. Kim, C.-R. Lee, and S. U. Hong, *J. Crystal Growth* **305**, 78 (2007).
- [11] J. W. Oh, S. R. Kwon, M.-Y. Ryu, B. Jo, and J. S. Kim, *J. Korean Vac. Soc.* **20**, 442 (2011).
- [12] G. G. Tarasov, Yu. I. Mazur, Z. Ya. Zhuchenko, A. Maabdorf, D. Nickel, J. W. Tomm, H. Kissel, C. Walther, and W. T. Masselink, *J. Appl. Phys.*

- 88**, 7162 (2000).
- [13] Y. C. Zhang, C. J. Huang, F. Q. Liu, B. Xu, J. Wu, Y. H. Chen, D. Ding, W. H. Jiang, X. L. Ye, and Z. G. Wang, *J. Appl. Phys.* **90**, 1973 (2001).
- [14] H. Y. Kim, M.-Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Lumine.* **132**, 1759 (2012).
- [15] H. J. Lee, M.-Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Appl. Phys.* **108**, 093521 (2010).
- [16] H. J. Lee, M.-Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Korean Vac. Soc.* **18**, 474 (2009).
- [17] N. K. Cho, S. P. Ryu, J. D. Song, W. J. Choi, and J. I. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 133104 (2006).
- [18] V. D. Dasika, J. D. Song, W. J. Choi, N. K. Cho, J. I. Lee, and R. S. Goldman, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 163114 (2009).
- [19] Y. P. Varshni, *Physica* **34**, 149 (1967).
- [20] O. Madelung, *Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology New Series, III/17a* (Springer, Berlin, 1982), p. 297.

Influence of InGaAs Capping Layers on the Properties of InAs/GaAs Quantum Dots

Se Ra Kwon^a, Mee-Yi Ryu^{a*}, and Jin Dong Song^b

^a*Department of Physics, Kangwon National University, Chuncheon 200-701*

^b*Nanophotonics Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791*

(Received September 28, 2012, Revised November 26, 2012, Accepted November 27, 2012)

The optical properties of InAs quantum dots (QDs) grown on a GaAs substrates by migration enhanced molecular beam epitaxy method have been investigated by using photoluminescence (PL) and time-resolved PL measurements. The luminescence properties of InAs/GaAs QDs have been studied as functions of temperature, excitation laser power, and emission wavelength. The PL peak of InAs QDs capped with In_{0.15}Ga_{0.85}As layer (QD2) measured at 10 K is redshifted about 80 nm compared with that of InAs QDs with no InGaAs layer (QD1). This redshift of QD2 is attributed to the increase in dot size due to the diffusion of In from the InGaAs capping layer. The PL decay times of QD1 and QD2 at 10 K are 1.12 and 1.00 ns taken at the PL peak of 1,117 and 1,197 nm, respectively. The reduced decay time of QD2 can be explained by the improved carrier confinement and enhanced wave function overlap due to increased QD size. The PL decay times for both QD1 and QD2 are independent on the emission wavelength, indicating the uniformity of dot size.

Keywords : InAs, Quantum dots, Photoluminescence, Time-resolved photoluminescence

* [E-mail] myryu@kangwon.ac.kr