

# As 차단 시간 변화에 의한 InAs 양자점의 광학적 특성

최윤호<sup>a</sup> · 류미이<sup>a\*</sup> · 조병구<sup>b</sup> · 김진수<sup>b</sup>

<sup>a</sup>강원대학교 물리학과, 춘천 200-701

<sup>b</sup>전북대학교 신소재공학부, 전주 561-756

(2012년 12월 25일 받음, 2013년 3월 9일 수정, 2013년 3월 11일 확정)

Arsenic interruption growth (AIG)법을 이용하여 GaAs 기판에 성장한 InAs 양자점(quantum dots, QDs)의 광학적 특성을 PL (photoluminescence)과 time-resolved PL을 이용하여 분석하였다. AIG법은 InAs 양자점 성장 동안 In 공급은 계속 유지하면서 셔터(shutter)를 이용해서 As 공급과 차단을 조절하는 방법이다. 본 연구에서는 As 공급과 차단을 1초(S1), 2초(S2), 또는 3초(S3) 동안 반복하여 성장한 InAs QDs과 As 차단 없이 성장한 기준시료(S0)를 사용하였다. AIG법으로 성장한 시료들의 PL 세기는 기준시료보다 모두 강하게 나타나고, As 차단 시간에 따라 PL 피크는 적색이동(redshifted) 또는 청색이동(blueshifted)하여 나타났다. 기준시료 S0의 PL 피크와 비교하였을 때 S1의 PL 피크의 적색이동은 양자점 평균 길이가 S0보다 증가하였기 때문이며, S3의 청색이동은 양자점 평균 길이가 S0보다 감소하였기 때문이다. AIG법으로 성장한 QDs 시료들의 PL 세기의 증가는 cluster의 감소, 양자점 밀도의 증가, 균일도의 향상, 종횡비(aspect ratio) 향상으로 설명된다. 온도에 따른 PL 세기와 PL 피크 에너지, PL 소멸 시간과 발광 파장에 따른 PL 소멸 시간을 측정하였다. As 공급과 차단을 2초로 하였을 때 cluster는 전혀 나타나지 않았고 양자점의 밀도는 증가하였으며 균일도와 종횡비도 향상되었다. 또한 S2는 가장 강한 PL 세기와 가장 긴 소멸 시간을 나타내었다. 이러한 결과는 AIG법을 이용하여 InAs 양자점의 크기, 조밀도, 균일도, 종횡비 등을 조절하여 원하는 파장대의 양자점을 성장할 수 있으며 발광 특성도 향상시킬 수 있음을 확인하였다.

주제어 : InAs, 양자점, 포토루미네선스, 시간분해 포토루미네선스

## I. 서 론

양자점(quantum dots, QDs)은 3차원적 양자 구속 효과와 더불어 낮은 문턱 전류(low threshold current), 높은 양자 이득(high quantum efficiency), 그리고 높은 열적 안정성(high thermal stability) 등으로 소자의 특성이 크게 향상될 것으로 기대되어 양자점 소자에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다 [1-6]. InAs 양자점은 기판과 성장 물질의 살창 불일치(lattice mismatch)에 의한 응력(strain)을 이용하여 자발적으로 양자점을 형성하는 Stranski-Krastanov (S-K) 성장 모드를 이용한 연구가 매우 활발하다 [7-11]. 그러나 S-K 모드를 이용한 자발형성 양자점은 성장과정에서 효율에 영향을 미치는 양자점의 크기, 모양, 공간적 밀도, 균일도 등을 제어하기가 힘들다. 또한 자발형성 양자점은 길이에 비해 높이가 낮아 전자의 파동함수를 완전히 구속하지 못하고 파동함수가 장벽으로 상당히 스며들게 되어 양공의 파동함수와 겹침이 작아져 광학적 특

성이 좋지 않다. 이러한 자발형성 양자점의 한계를 개선하고 광학적 특성을 향상하기 위하여 응력층(strained layer)을 이용하거나 III족과 V족 물질의 성장 거동을 제어하여 성장한 InAs 양자점에 관한 많은 연구결과가 발표되었다 [12-18]. 본 연구에서는 양자점의 크기(모양), 공간 밀도, 균일도 등을 제어한 InAs/GaAs 양자점의 최적의 성장 조건을 얻기 위하여 As interruption growth (AIG)법을 이용하였다. AIG법으로 성장한 InAs 양자점의 광학적 특성을 PL (photoluminescence)와 TRPL (time-resolved PL)을 이용하여 분석하였다.

## II. 실험방법

InAs 양자점 시료들은 V80H MBE (molecular beam epitaxy) 장비를 이용하여 n-GaAs (001) 기판 위에 성장하였다. 먼저 GaAs 버퍼층을 610°C에서 성장한 후, 기판

\* [전자우편] myryu@kangwon.ac.kr

온도를 470°C로 낮춰서 InAs 양자점을 성장하였다. PL 측정을 위해 GaAs 캡층을 InAs 양자점 위에 470°C에서 30 nm 성장한 후, 610°C에서 100 nm 성장하였다. Fig. 1(a)에 InAs 양자점의 구조를 나타내었다. InAs 양자점은 AIG 법으로 In 공급은 계속하면서 셔터(shutter)를 이용해서 As을 주기적으로 차단과 공급을 반복하면서 성장하였다. Fig. 1(b)는 AIG법을 도식화하여 나타내었다. As 공급과 차단을 1초(S1), 2초(S2), 또는 3초(S3) 동안 반복하여 InAs 양자점을 성장하였다. 또한 In과 As 공급의 차단 없이 S-K 모드로 자발 형성한 양자점을 기준시료(S0)로 성장하였다. 본 연구는 As 공급 조건에 따라 성장시킨 InAs 양자점의 발광 특성을 분석하기 위하여 PL과 TRPL 측정을 하였으며, 여기광원으로 각각 cw 다이오드 레이저( $\lambda=532$  nm)와 펄스 다이오드 레이저( $\lambda=634$  nm, pulse width=93 ps)를 사용하였다. PL과 TRPL 신호는 NIR-PMT (Hama-matsu R5509-73) 검출기를 사용하여 측정하였다.

### III. 실험결과 및 논의

저온(10 K)에서 측정한 InAs 양자점 시료들의 PL 스펙트럼을 Fig. 2에 나타내었다. 기준시료 S0의 PL 피크는 990 nm에서 나타나고, AIG법으로 성장한 S1과 S2의 PL 피크는 각각 1,006 nm와 998 nm로 적색이동(redshifted)하여 나타난다. 그러나 As 공급과 차단을 3초씩 반복하여 성장한 S3의 PL 피크는 청색이동(blueshifted)하여 S0 시료보다 단파장인 985 nm에서 PL 피크가 나타난다. Fig. 2에 보여주듯이 AIG법으로 성장한 시료들의 PL 세기는 기

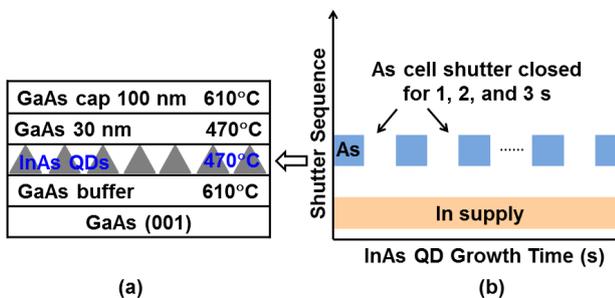


Figure 1. (a) Schematic structures of InAs quantum dots, (b) Illustration of a shutter sequence for the growth of InAs QDs by the As interruption technique.

준시료보다 모두 강하게 나타나고, S2의 PL 세기가 가장 강하게 나타난다. 기준시료와 비교하였을 때 AIG법으로 성장한 시료들의 PL 세기의 증가와 PL 피크의 적색이동(S1,S2)과 청색이동(S3)은 As 공급 시간 변화에 의해 형성된 양자점의 특징(크기와 모양, 밀도)으로 설명할 수 있다.

AIG법에 의한 As 공급과 차단 시간 변화에 따른 InAs 양자점의 크기와 모양 변화를 원자력간현미경(atomic force microscope, AFM)을 이용하여 분석하였다(not shown here). S-K 모드로 성장한 기준시료에서는 큰 InAs cluster가 나타났으나, As 차단 시간을 증가함에 따라 양자점의 밀도는 증가하고 cluster는 급격히 감소함을 보였다 [17]. S2의 AFM 이미지에서는 InAs cluster가 전혀 나타나지 않았으나 S3는 기준시료와 비슷한 InAs cluster가 다시 나타났다. AIG법으로 성장한 양자점 시료의 PL 세기의 증가는 As 차단 시간을 증가하였을 때 cluster의 감소, InAs 양자점 밀도의 증가와 종횡비의 향상으로 설명할 수 있다. S2 시료의 경우는 cluster가 전혀 나타나지 않았고 양자점의 밀도는  $9.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 로 가장 높고 종횡비도 가장 높았다. AFM 이미지에서 InAs 양자점 S0, S1, S2, S3의 평균 길이(높이)는 각각 20.75 (2.53), 21.26 (2.74), 20.55 (2.9), 20.15 (2.77) nm이었다 [17]. 양자점의 평균 길이는 As 공급과 차단을 각 1초하였을 때 기준시료 S0보다 증가하였다가 공급과 차단시간을 2초, 3초로 증가함에 따라 점차 감소하였으며, S3의 평균 길이는 기준시료보다 작아졌다. 그러나 양자점의 평균 높이는 세 시료 모두 기준시료보다 높아졌다. 기준시료인 S0의 PL 피크와 비교하였을 때 S1의 적색이동은 양자점 평균 길이가 S0보다 증가하

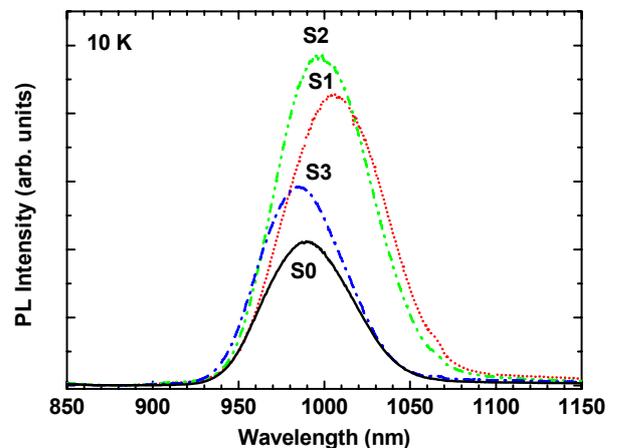


Figure 2. PL spectra of InAs QDs measured at 10 K.

였기 때문이며, S3의 청색이동은 양자점 평균 길이가 S0보다 감소하였기 때문이다. 그리고 S1의 PL 피크와 비교했을 때 S2의 PL 피크의 청색이동은 양자점의 평균 길이는 S1보다 감소하고 평균 높이는 증가하였기 때문으로 설명된다.

온도에 따른 PL 피크의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. AFM 이미지에서 cluster가 나타난 S0와 S3의 PL 피크 에너지는 40 K까지 일정하다가 온도가 증가함에 따라 빠르게 감소함을 보였다.

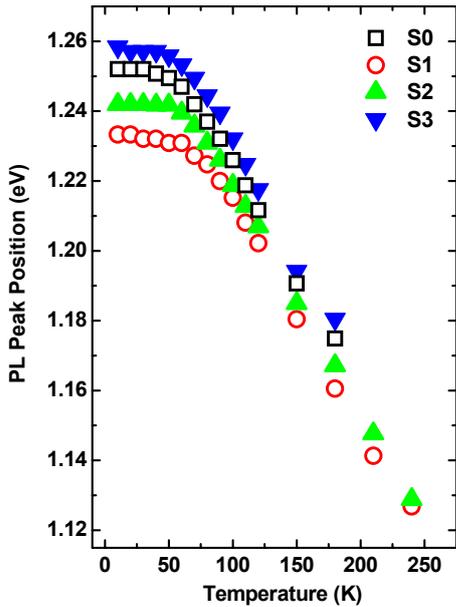


Figure 3. Temperature-dependent PL peak energies of InAs QDs.

그리고 cluster가 감소한 S1과 전혀 나타나지 않은 S2의 PL 피크는 60 K까지 일정하다가 온도가 증가함에 따라 점차 감소하였다. S1과 S2의 PL 세기는 80 K까지는 서서히 증가하다가 90 K 이상에서는 급격히 감소하였다(not shown here). 저온 영역(10~80 K까지)에서 PL 세기의 증가는 양자점 내에 구속되어 있던 캐리어가 온도가 증가함에 따라 열에너지의 증가로 인해 양자구속에서 벗어나 발광 과정에 관여하는 캐리어의 증가로 설명된다. 온도가 더 증가함에 따라 PL 피크 에너지와 PL 세기의 감소는 열에너지에 의한 격자 팽창과 전자와 포논사이의 상호작용(비발광 재결합)의 증가로 설명된다. S2 (S0)의 PL 소멸 시간은 온도를 10 K에서 70 K (60 K)까지 증가하였을 때 1.27 ns (1.18 ns)에서 1.76 ns (1.72 ns)로 증가하다가 온도를 더 증가함에 따라 급격하게 감소하였다(not shown here). S1과 S3의 PL 소멸 시간도 유사한 온도 의존성을 나타내었다. 낮은 온도 영역(10~70 K)에서 온도의 증가에 따른 PL 소멸 시간의 증가는 발광 수명시간의 특성을 나타낸다 [12]. 저온 영역에서의 PL 세기와 PL 소멸시간의 증가는 S2 (S0) 시료의 PL 특성이 ~70 (60) K까지 발광 재결합이 비발광 재결합보다 우세하다는 것을 나타낸다.

Fig. 4(a)는 10 K에서 측정한 S2의 발광 파장에 따른 PL 소멸 곡선을 나타내었다. Fig. 4(a)에서 보여주듯이 PL 소멸 곡선은 빠르게 감소하는 성분( $\tau_1$ )과 느리게 감소하는 성분

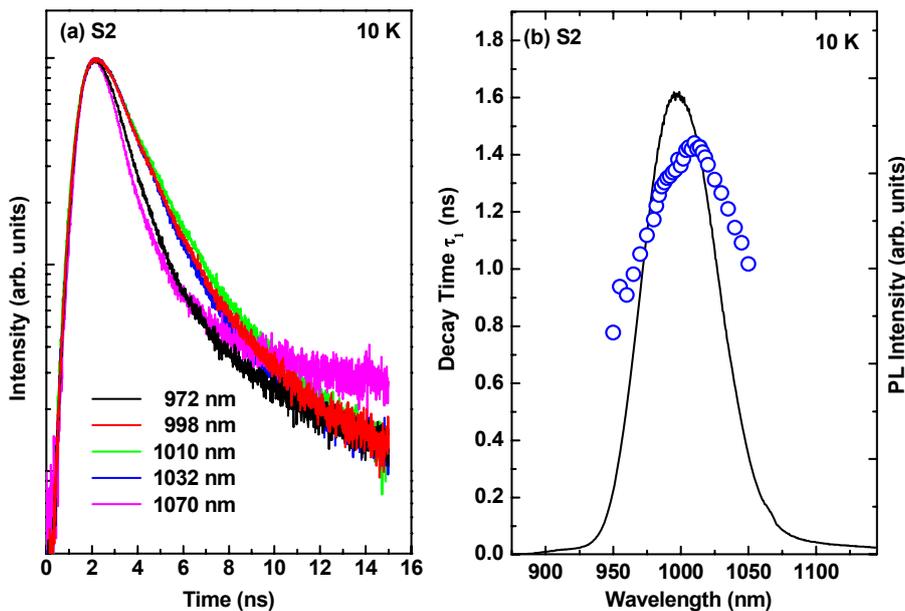


Figure 4. (a) PL decay curves and (b) PL decay times (circles) of the sample S2 as a function of emission wavelength taken at 10 K. The PL spectra measured at 10 K are also displayed.

분( $\tau_2$ )으로 이루어져 있음을 알 수 있다. 이러한 PL 소멸 곡선은 이항 지수 함수인

$$I(t) = A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)$$

로 잘 표현된다. 빠른 PL 소멸 성분은 발광 파장이 증가함에 따라 점차 느려지다가 1,010 nm에서 가장 느린 소멸을 보이고, 파장이 더 증가하였을 때 PL은 점차 빠르게 소멸한다. Fig. 4(b)는 10 K에서 측정된 S2의 PL 스펙트럼과 발광 파장에 따른 PL 소멸 시간(decay time)을 나타낸다. PL 소멸 시간은 PL 피크를 중심으로 장파장과 단파장으로 이동하면서 점차 짧아진다. 나머지 세 시료의 PL 소멸 시간도 유사한 결과를 나타내었다. PL 피크인 998 nm에서는 캐리어 소멸 시간이 1.38 ns이고, 1,010 nm에서 1.44 ns로 가장 느리게 나타난다. PL 피크 근처에서 가장 긴 소멸 시간을 보이는 것은 상대적으로 작은 양자점(높은 에너지 상태) 또는 wetting layer로부터 캐리어 유입(migration)의 증가로 설명할 수 있다. 다른 성장 방법과 조건에서 성장한 InAs 양자점 시료들로부터 발광 파장에 따른 PL 소멸 시간의 유사한 결과가 발표되었다 [11,12].

#### IV. 결 론

MBE를 이용하여 GaAs 기판에 As interruption growth (AIG)법으로 성장한 InAs QDs의 광학적 특성을 PL과 TRPL을 이용하여 분석하였다. 기준시료 S0의 PL 피크와 비교하였을 때 As 공급과 차단 시간을 1초(S1)에서 2초(S2)까지 증가하였을 때 PL 피크는 적색이동하였고, 3초(S3)로 증가하였을 때는 청색이동하여 기준시료보다 단파장에서 PL 피크가 나타났다. 또한 AIG법으로 성장한 양자점 시료들의 PL 세기가 기준시료보다 모두 강하게 나타났다. S1의 PL 피크의 적색이동은 양자점 평균 길이가 S0보다 증가하였기 때문이며, S3의 청색이동은 양자점 평균 길이는 감소하고 높이는 증가하였기 때문이다. S2의 PL 피크는 S0의 PL 피크보다는 적색이동하였고, S1의 PL 피크보다는 청색이동하여 나타났다. 이것은 S2의 양자점의 평균 길이는 S1보다 감소하고 평균 높이는 증가하였기 때문이다. AIG법으로 성장한 양자점의 강한 PL 세기는 cluster의 감소와 양자점의 공간 밀도 증가와 균일도 향상, 종횡비 향상으로 설명할 수 있다. 시료의 온도를 증가하였을 때 cluster가 감

소한 S1과 전혀 나타나지 않은 S2의 PL 세기, PL 피크 에너지, PL 소멸 시간의 변화가 S0와 S3에 보다 느린 변화, 즉 우수한 온도 특성을 나타내었다. 특히 cluster가 전혀 나타나지 않은 S2가 가장 강한 PL 세기와 가장 긴 소멸 시간을 나타내었다. 이러한 결과로부터 InAs 양자점 성장 동안에 As 공급과 차단을 조절함으로써 양자점의 크기, 조밀도, 균일도, 종횡비를 조절하여 발광 특성을 향상시킬 수 있음을 확인하였다.

#### 감사의 글

이 논문은 2010년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(2009-0073699, 2010-0021555). 본 연구는 강원대학교 공동실험실습관의 기기를 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. Thomsen, 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 Vacuum 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 Vacuum Soc.* **20**, 442 (2011).
- [12] H. Y. Kim, M. -Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Lumine.* **132**, 1759 (2012).
- [13] H. J. Lee, M. -Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Appl. Phys.* **108**, 093521 (2010).
- [14] H. J. Lee, M. -Y. Ryu, and J. S. Kim, *J. Korean Vacuum Soc.* **18**, 474 (2009).
- [15] N. K. Cho, S. P. Ryu, J. D. Song, W. J. Choi, and J. I. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 133104 (2006).
- [16] 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).
- [17] B. Jo, C. -R. Lee, J. S. Kim, K. Pyun, S. K. Noh, J. S. Kim, J. -Y. Leem, and M. -Y. Ryu, *J. Korean Phys. Soc.* **60**, 460 (2012).
- [18] S. R. Kwon, M. -Y. Ryu, and J. D. Song, *J. Korean Vacuum Soc.* **21**, 342 (2012).

## Optical Properties of InAs Quantum Dots Grown by Changing Arsenic Interruption Time

Yoon Ho Choi<sup>a</sup>, Mee-Yi Ryu<sup>a\*</sup>, Byounggu Jo<sup>b</sup>, and Jin Soo Kim<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Department of Physics, Kangwon National University, Chuncheon 200-701

<sup>b</sup>Division of Advanced Materials Engineering, Chonbuk National University, Jeonju 561-756

(Received December 25, 2012, Revised March 9, 2013, Accepted March 11, 2013)

The optical properties of InAs quantum dots (QDs) grown on GaAs substrates grown by molecular beam epitaxy have been studied using photoluminescence (PL) and time-resolved PL measurements. InAs QDs were grown using an arsenic interruption growth (AIG) technique, in which the As flux was periodically interrupted by a closed As shutter during InAs QDs growth. In this study, the shutter of As source was periodically opened and closed for 1 (S1), 2 (S2), or 3 s (S3). For comparison, an InAs QD sample (S0) without As interruption was grown in a pure GaAs matrix for 20 s. The PL intensity of InAs QD samples grown by AIG technique is stronger than that of the reference sample (S0). While the PL peaks of S1 and S2 are redshifted compared to that of S0, the PL peak of S3 is blueshifted from that of S0. The increase of the PL intensity for the InAs QDs grown by AIG technique can be explained by the reduced InAs clusters, the increased QD density, the improved QD uniformity, and the improved aspect ratio (height/length). The redshift (blueshift) of the PL peak for S1 (S3) compared with that for S0 is attributed to the increase (decrease) in the QD average length compared to the average length of S0. The PL intensity, PL peak position, and PL decay time have been investigated as functions of temperature and emission wavelength. S2 shows no InAs clusters, the increased InAs QD density, the improved QD uniformity, and the improved QD aspect ratio. S2 also shows the strongest PL intensity and the longest PL decay time. These results indicate that the size (shape), density, and uniformity of InAs QDs can be controlled by using AIG technique. Therefore the emission wavelength and luminescence properties of InAs/GaAs QDs can also be controlled.

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

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