

열처리 온도에 따른 InAs 양자점의 특성변화

최현광 · 이선연 · 이제원 · 조관식 · 전민현*

인제대학교 대학원 광대역정보통신학과
(논문접수일 : 2001년 7월 6일)

Abnormal behavior in photoluminescence of InAs quantum dots subjected to annealing treatment

Hyon Kwang Choi, S. Y. Lee, Jewon Lee, Guan Sik Cho, and Minhyon Jeon*

Dept. of broadband information and communication Graduate School, Inje university,
Kimhae, Kyoung-nam, 621-749, Korea

(Received July 6, 2001)

요 약

MBE를 이용하여 GaAs 위에 InAs 양자점을 성장시키고 Ga, As, In, As의 순서로 셔터를 교대로 열어주는 방식으로 3주기 반복하여 InGaAs 층을 성장시키고 그 위에 다시 GaAs층을 성장시킨 시료(시료번호: QD1)에 대하여 온도를 변화시키며 열처리를 수행한 후 그 광학적 특성을 분석하였다. 기존의 다른 그룹들의 연구결과처럼, InAs 양자점을 성장시키고 GaAs 에피층을 barrier층으로 성장시킨 경우, 열처리 온도가 증가함에 따라 발광피크는 단파장 쪽으로 이동하는 것을 확인하였다. 반면에, InGaAs 층을 포함하고 있는 QD1 시료의 경우, 발광 피크의 위치가 열처리 온도가 600 °C가 될 때까지는 장파장 쪽으로 이동하다가, 그 이상의 온도에서는 단파장 쪽으로 이동하는 현상을 관찰하였다. 또한, 발광피크의 반치폭도 열처리 온도가 증가하면서 감소하는 경향을 보이다가 다시 증가 되는 경향을 보이고 있다.

Abstract

We have investigated the annealing effects on the optical properties of InAs quantum dots(QDs) capped with InGaAs(sample QD1), where InGaAs layer was deposited by opening Gallium, Arsenic, Indium and Arsenic shutters alternately with 3 periods, grown by molecular beam epitaxy. The emission wavelength of the sample of InAs QDs capped by GaAs barriers was observed to be blue-shifted as the annealing temperature was increased. On the other hand, the photoluminescence(PL) peak position of sample QD1 was observed to be red-shifted at the annealing temperature of up to 600 °C and, then, it was found to be blue-shifted at temperatures ranging from 700 to 800 °C. The full width at half maximum values of sample QD1 subjected to annealing treatments show different behavior compared to typical InAs quantum dot structures.

1. 서 론

Stranski-Krastanov 성장 모드를 이용하여 성장시킨 InAs/GaAs 자발형성 양자점 구조는 원자와 같이

3차원적인 구속효과로 인한 δ -함수와 같은 불연속적인 상태밀도(density of state) 때문에 탁월한 소자 특성을 갖는다고 보고되어 지고 있다 [1-3]. 이는 양자우물구조보다 high differential gain, low threshold

* E-mail : mjeon@ijnc.inje.ac.kr

current density, 그리고 high temperature stability를 가지므로 레이저와 같은 광전소자 구현 시 이점이 될 수 있음은 주지의 사실이다 [4-6]. 그러나 이러한 뛰어난 양자점의 특성에도 불구하고 자발형성 양자점은 발광파장의 장파장 구현이 어렵다는 문제와 inhomogeneous broadening을 초래하는 양자점의 크기 및 조성의 균일화를 해결해야하는 것이 당면 과제이다 [7,8]. 성장된 양자점의 광학적 및 구조적 특성을 분석할 수 있는 포토루미네스스(photoluminescence-PL) 측정과 급속 열처리(rapid thermal annealing-RTA)방법은 양자점의 양자효율과 크기 및 조성을 분석하고 반치폭(full width at half maximum-FWHM)을 변화시킬 수 있는 중요한 수단이 된다. 현재까지의 문헌조사에 따르면 열처리온도가 증가함에 따라 열처리 과정에서 In-Ga의 inter-diffusion에 의한 실제 유효 양자점 크기의 변화 및 조성의 변화에 의해 발광피크는 단파장 쪽으로 이동하며 발광피크의 반치폭도 열처리 온도가 증가하면서 감소하는 경향을 보인다 고 밝혀져 있다 [9-13].

본 연구에서는 GaAs 기판위에 InAs 양자점 성장 후 기존의 성장방법과 다른 형태로 InGaAs 층을 성장하여 열처리에 의한 발광 파장의 변화와 반치폭의 변화를 관찰하였고, 그 결과 기존의 보고된 특성과는 달리, 특정온도에서 적색천이(red-shift)가 발생하는 것을 발견하였다.

2. 실험

시료는 분자선 에피택시(molecular beam epitaxy) 장비를 사용하여 9×10^6 torr의 arsenic BEP (beam equivalent pressure) 분위기 하에서 semi-insulating GaAs (100) 기판 위에 성장하였으며, 580 °C에서 GaAs 완충층을 3000 Å 성장한 후 기판온도를 400 °C로 내려서 InAs 양자점을 성장하였다. 1.7 ML까지는 InAs이 단층성장을 하고, 그 이후부터는 3차원 성장으로의

전이 모습을 reflection high energy electron diffraction (RHEED)으로 관찰되었다. 이때 InAs 양자점의 성장률은 0.07 ML/s로 하였다. InGaAs 양자점 구조가 들어가 있는 시료(QD1)는 2.0 ML의 InAs 양자점이 성장된 후 성장을 멈추고, 그 위에 Ga(0.85 ML), As recovery, In(0.46 ML), As recovery를 3주기로 교번하여 쌓아서 InGaAs 층으로 capping 하였고, 다시 그 위에 250 Å의 도핑 되지 않은 GaAs를 성장시켰다. 한편 기준시료는 GaAs 위에 InAs 양자점을 성장시키고, 그 위에 GaAs를 성장시켰다. 기준시료와 QD1 시료는 InAs 양자점을 형성시킨 후 As 분위기에서 30초 동안 recovery time을 주었다. 기준시료와 QD1 시료 성장시 성장 조건은 모두 동일하게 하였으며, 자세한 성장조건과 시료구조는 Table 1과 Fig. 1에 나타내었다.

시료들의 발광특성을 보기 위해 포토루미네스스 스펙트럼 분석을 10 K에서 수행하였다. 이때 전자-정공쌍(electron-hole pairs)을 생성하기 위하여 514.5 nm의 파장을 갖는 Ar⁺ 레이저 source를 사용하였으며, 발광파장의 신호는 1 m single monochromator를 통하여 액체 질소로 냉각된 Ge 포토다이오드를 이용하여 검출하였다.

시료의 급속 열처리(RTA)는 질소 분위기에서 500 °C에서부터 800 °C까지 각각 30초간 수행하였다. 열처리시 에피층 표면으로부터 As의 desorption을 방지하기 위하여 에피층 표면을 GaAs 웨이퍼로 덮은 상태에서 하였다.

3. 결과 및 토의

Fig. 2는 기준시료와 InGaAs 구조를 포함하고 있는 InAs 양자점 시료의 발광특성을 10 K에서 측정하여 나타낸 것이다. Fig. 2에서 기준시료는 발광피크가 1.227 eV에서 위치하고 있으며, InGaAs로 capping한 QD1 시료는 기준시료보다 낮은 에너지 쪽으로 약

Table 1 Growth conditions for InAs QD samples.

Growth temperature(°C)		Growth rate				As BEP torr	V/III-BEP ratio
buffer layer	QDs/InGaAs/ GaAs capping layer	GaAs	InAs	Ga	In		
580	400	8612 Å/h	956 Å/h	0.845 ML/s	0.093 ML/s	9×10^6	~30

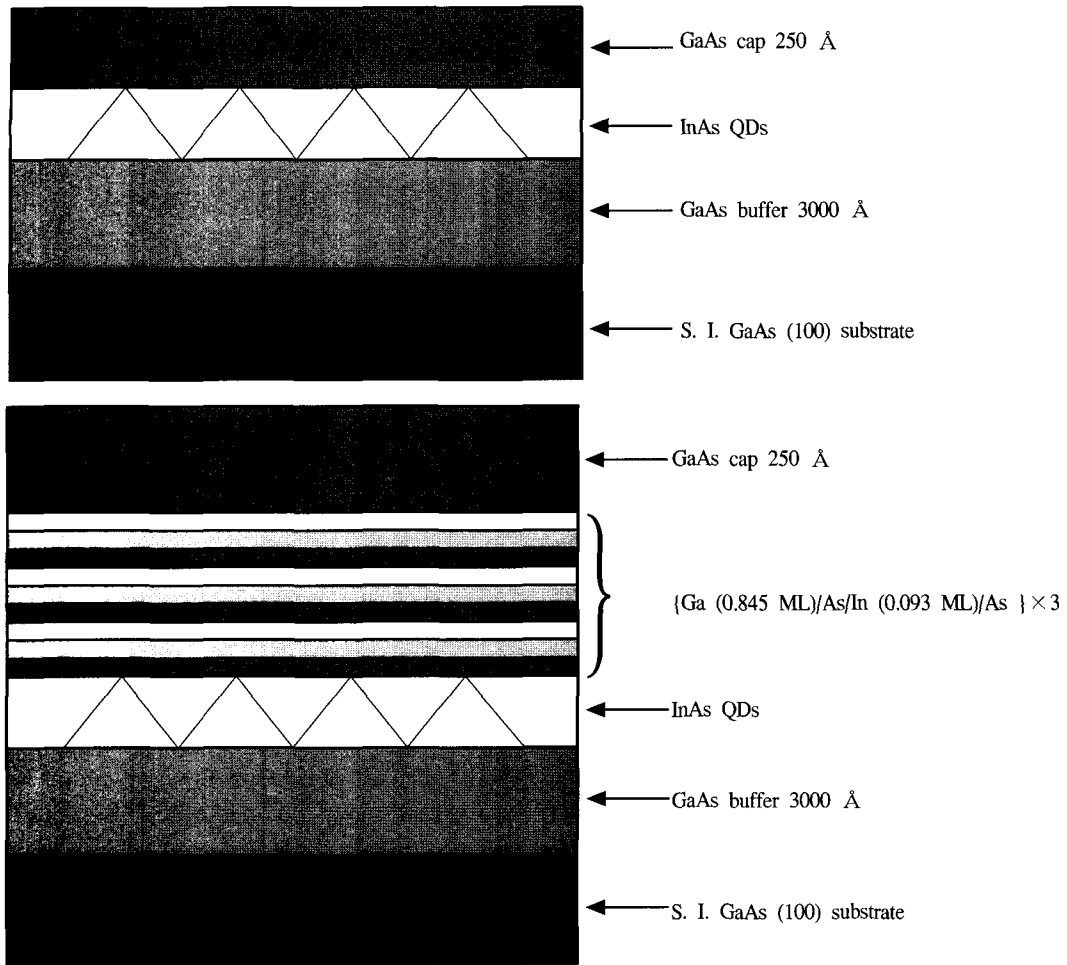


Fig. 1 Layer structure of self-assembled InAs QDs capped by (a) GaAs (b) InGaAs layer.

57 meV 이동한 1.170 eV에 위치하고 있다. QD1 시료의 발광피크의 위치가 장파장 쪽으로 이동한 원인을 살펴보면 첫째로, 양자점에 대해 InGaAs 층이 기준 시료의 GaAs 층보다 상대적으로 격자정합하기 때문에 strain reducing 효과가 나타나 에너지 준위가 감소했기 때문인 것으로 생각된다 [12]. 둘째로, Mukai [14]와 Ustinov [15]등의 연구그룹에서 발표한 바에 의하면 QD1시료처럼 InGaAs층으로 양자점을 capping 해줄 때에 InAs 양자점의 크기가 커진다고 보고하고 있다. 양자점의 크기가 커지게 되면 size effect에 의해서 발광피크가 장파장으로 이동하게 된다. 또 다른 원인으로는 외부 장벽의 에너지 준위가 InAs 양자점 준위에 영향을 줄 수 있는데, InGaAs층이 GaAs층 보다 low potential barrier를 갖기 때문에 낮은

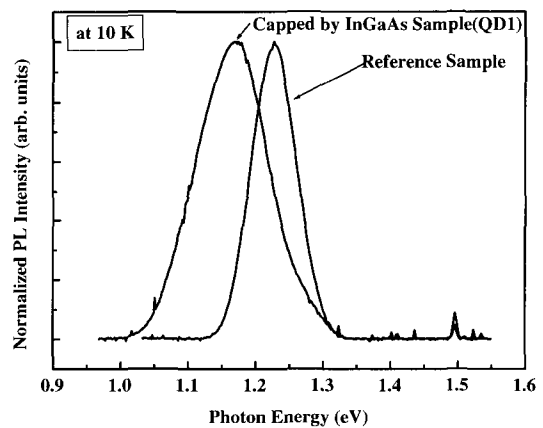


Fig. 2 Normalized PL spectra measured at 10 K as a function of energy.

에너지로 이동한다. 최근 발표되어진 보고에서 [8] high potential barrier를 갖는 thin AlAs 층위에 InAs 양자점을 성장한 경우, InAs 양자점의 에너지 준위는 high 에너지 쪽으로 이동하였다. 이는 InAs 양자점이 high potential barrier와 양자점의 크기가 감소하여 나타나는 size effects의 복합적인 효과 때문으로 설명하고 있다. 이와 유사하게 본 논문에서는 InAs 양자점을 InGaAs으로 capping 해주게 되면 에너지 준위가 낮아지면서 적색천이가 일어나는데, 이는 위에서 언급한 strain reducing, size effect, 그리고 low potential barrier들의 복합적인 효과 때문이기인한다. 발광피크의 반치폭을 살펴보면, InGaAs 층을 포함하고 있는 QD1 시료의 반치폭이 기준시료보다도 넓게 나타난다. 이는 InAs 양자점 위에 Ga/As/In/As를 교번 하여 성장할 때 기판온도가 400 °C로 낮았기 때문에 좋지 않은 결정특성을 가지기 때문이다. 또한 InAs 양자점 위에 Ga/As/In/As를 교번하여 성장할 때 각각의 atom들이 InGaAs층의 형성시에 InAs 양자점과의 상호작용으로 인하여 양자점의 size에 영향을 주었을 것으로 보인다.

Fig. 3은 시료 QD1을 500~800 °C까지 열처리하여 10 K에서 측정된 발광피크의 변화를 보여주고 있다. 기준시료의 경우에는 Leon 등 [9], Malik 등을 [11] 비롯한 여러 그룹에 의해 보고된 열처리 온도에 따른 발광파장의 변화와 같은 경향을 나타 내주고 있는 반면, 시료 QD1은 열처리 온도에 따라 발광피크의 변화가 상반된 경향으로 나타나고 있다. 즉, 기

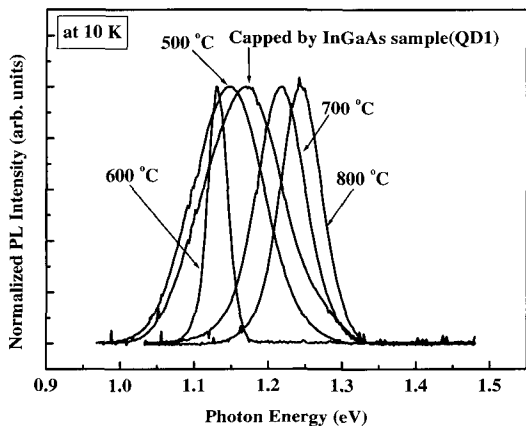


Fig. 3 PL spectra measured at 10 K with different annealing temperatures.

존의 GaAs 장벽을 사이에 두고 성장한 InAs 양자점의 경우 열처리 온도가 점점 올라가면서 InAs 양자점과 GaAs 장벽층 사이에 intermixing효과와 surface segregation으로 인한 양자점의 크기와 조성이 변화되어 발광피크가 단파장 쪽으로 이동되고, 반치폭도 좁아지는 것으로 보고하였다 [9-11]. 반면 본 연구에서 제작된 시료 QD1은 열처리 온도가 600 °C까지는 발광파장이 장파장 쪽으로 이동하고 있으며, 반치폭이 좁아지는 경향을 보인다. 열처리에 의하여 발광파장이 장파장으로 이동하는 것은 본 연구에서 처음으로 관측한 현상이다. 발광피크가 장파장으로 이동하는 주된 원인으로는 낮은 성장 온도에서 나타났던 InGaAs층의 결정특성이 열처리에 의해 향상되면서, As-grown(시료 QD1)의 발광특성에서 언급했던 InGaAs층의 strain reducing 효과와 낮은 에너지 준위 특성이 InAs 양자점의 발광특성에 영향을 주었기 때문이다. 또한 Ga/As/In/As의 방식대로 InGaAs층을 성장하는 과정에서 InAs 양자점의 표면에 영향을 주었던 부분이 열처리 과정에서 실제 유효 양자점 크기와 균일도에 영향을 주었기 때문이다. 열처리 온도가 600 °C 이상의 경우에는 발광피크가 단파장 쪽으로 이동하고 반치폭도 약간 증가했다가 좁아지는 것을 알 수 있다. 이는 In-Ga의 intermixing 효과가 증가하여 QD size와 uniformity에 변화를 주었기 때문이다.

Fig. 4는 열처리 온도에 따른 발광피크의 에너지 준위와 반치폭의 변화를 요약하여 나타낸 것으로서 Fig. 3의 발광 스펙트럼에서의 경향을 확연히 확인할 수 있다. 여기서 점선(dashed line)은 이해를 쉽게 하기 위하여 나타낸 것이다. 이때 600 °C 이상의 온도에서 열처리 온도에 따른 발광피크의 위치의 변화가 기존의 보고되어진 값들에 [9,11] 비해서 상당히 작은 값을 보여주고 있다. 이는 GaAs과 InAs 양자점 사이의 In-Ga의 inter-diffusion 현상이 InGaAs 층에 의해서 영향을 받아서 기존의 결과보다 양자점의 크기와 조성의 변화에 영향을 적게 주었기 때문이다. 이 그림에서 주목해야 할 부분은 QD1 시료를 600 °C에서 열처리하였을 때 발광피크는 1.131 eV로써, As-grown(시료 QD1)의 경우에 비하여 39 meV 낮은 에너지 쪽으로 이동하였다. 이때의 발광피크의 반치폭은 26 meV로써 108 meV를 갖는 As-grown(시료

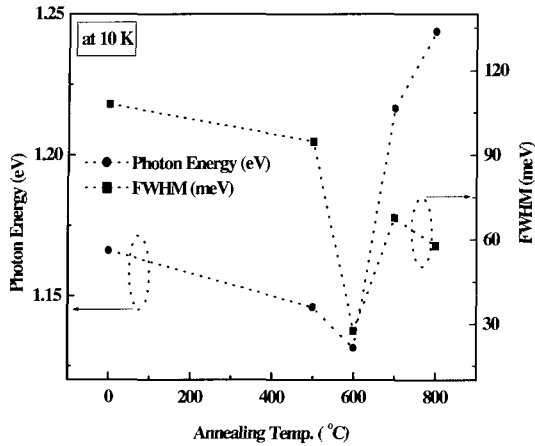


Fig. 4 The peak positions(eV) and FWHM(meV) for each QD sample. The dashed lines are only guides for the eye.

QD1)의 경우에 비해서 양자점의 균일도가 증가하였음을 간접적으로 나타 내주고 있다. 이는 양자점의 균일도가 열처리를 하는 과정에서 Ga/As/In/As를 교번 하여 성장한 InGaAs층의 영향으로 현저히 향상되었기 때문이다. 일반적으로, 양자점의 발광피크의 위치가 열처리과정에서 단파장 쪽으로 이동하게 되는데 이는 InAs 양자점을 1.3~1.55 μm 의 장파장 발광에 응용 할 때 기대하지 않는 결과를 얻을 가능성이 있다. 따라서 본 연구에서 얻은 결과는 레이저와 같은 발광 소자의 응용차원에서 매우 중요하다고 할 수 있겠다.

4. 결 론

본 연구에서는 MBE를 이용하여 InAs 양자점을 성장한 후 InGaAs 층을 교번 하여 성장하고 이를 열처리하여 광학적 특성 변화를 조사하였다. 시료들에 대하여 포토루미네스스를 측정 한 결과 양자점의 inhomogeneous broadening에 기인하는 발광피크의 반치폭은 GaAs barrier를 갖는 전형적인 InAs 양자점에 비하여 넓게 나타나고 있었다. 이들 시료에 대하여 500~800 °C의 온도범위에서 열처리를 한 포토루미네스스를 측정 한 결과는 InGaAs 층을 포함하고 있는 시료의 경우 발광 피크의 위치가 열처리 온도가 600 °C가 될 때까지는 장파장 쪽으로 이동하다가, 그 이상의 온도에서는 단파장 쪽으로 이동

하는 현상을 보이고 있다. 또한 발광피크의 반치폭도 열처리 온도가 증가하면서 감소하는 경향을 보이다가 다시 증가하는 형태가 나타나고 있다. 특히 본 연구에서는 열처리온도가 600 °C 부근에서 InGaAs 양자점의 결정특성이 critical 하게 나타나고 있다. 이는 기존의 경우에는 GaAs과 InAs 사이의 In-Ga의 inter-diffusion 현상이 InGaAs 층에 의해서 영향을 받으므로 인해서 기존 시료의 경우보다 양자점의 크기와 조성 변화에 이례적 영향을 주었기 때문인 것으로 판단된다. 이 현상에 대하여 좀더 자세한 연구가 진행될 것이다.

감사의 글

본 연구는 2000년도 인제대학교 교내학술연구비 지원에 의하여 수행되었으며, 이에 감사를 드립니다.

References

- [1] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203 (1993).
- [2] J. M. Garcia, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. F. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2014 (1997).
- [3] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, J. Garcia, and P. M. Petroff, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1727 (1997).
- [4] Y. Arakawa and H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [5] S. J. Xu, X. C. Wang, S. J. Chua, C. H. Wang, W. J. Fan, W. J. Fan, J. Jiang, and X. G. Xie, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3335 (1998).
- [6] H. Shoji, Y. Nakata, K. Mukai, Y. Sugiyama, M. Sugawara, N. Yokoyama, and H. Ishikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, L903 (1996).
- [7] F. Heinrichsdorff, M. H. Mao, N. Kirstaedter, A. Krost, D. Bimberg, A. O. Kosogov, and P. Werner, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 22 (1997).
- [8] J. S. Kim, P. W. Yu, J. Y. Leem, J. I. Lee, S.K. Noh, Jong Su Kim, and S. M. Kim, J. S. Son, U.

- H. Lee, J. S. Yim, and D. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3247 (2001).
- [9] R. Leon, Y. Kim, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou, and D. J. H. Cockayne, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1888 (1996).
- [10] A. O. Kocsogv, P. Werner, U. Gösele, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, N. A. Bert, and Zh. I. Alferov, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3072 (1996).
- [11] S. Malik, C. Roberts, R. Murray, and M. Pate, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1987 (1997).
- [12] B. Lita, R. S. Goldman, J. D. Phillips and P. K. Bhattacharya, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2797 (1999).
- [13] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, and J. S. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1111 (1999).
- [14] K. Mukai and M. Sugawara, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3963 (1999).
- [15] V. M. Ustinov, N. A. Maleev, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, A. Yu. Egorov, A. V. Lunev, B. V. Volovik, I. L. Krestnikov, Yu. G. Musikhin, N. A. Bert, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2815 (1999).