

P 변조도핑한 In(Ga)As/InGaAsP 양자점에 대한 운반자 동역학

장유동^{1*} · 박재규¹ · 이동한¹ · 홍성의² · 오대곤²

¹충남대학교 물리학과, 대전 305-764

²한국전자통신연구원, 대전 305-350

(2006년 2월 10일 받음)

P-modulation doping된 In(Ga)As/InGaAsP 양자점에서의 decay time 특성을 undoped 양자점 시료와의 비교를 통해 살펴보았다. 10 K에서의 photoluminescence (PL) 세기는 doping된 양자점이 doping되지 않은 양자점에 비해 약 10배 정도 약하게 나왔다. 또한 Time-resolved PL (TR-PL) 실험을 통해 얻은 양자점 시료의 기저상태 PL peak에서의 decay time은 doping된 양자점이 doping되지 않은 양자점에 비해 매우 짧게 나왔다. 이러한 PL 세기와 decay time 특성을 통해서 본 연구에서 측정된 doping된 양자점의 경우에는 doping에 의해 결함이 증가하게 되고, 그로 인해 운반자의 비발광 경로가 증가하게 되어 doping된 양자점의 경우에 decay time이 짧게 나타나는 것으로 분석하였다.

주제어 : 양자점, 변조도핑, 쇠퇴시간

1. 서론

반도체 양자점이 가지는 영차원적인 특성 때문에 나타나는 매우 낮은 발진 임계전류와 frequency chirping이 없는 등 많은 좋은 점들 때문에 반도체 양자점에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다[1-3]. 특히 양자점 레이저 다이오드 (LD) 분야의 연구는 많은 발전을 이루고 있다. 이미 GaAs 기판에 성장한 In(Ga)As 양자점을 이용해 양자점 레이저를 만들어서 광통신 파장대역인 1.3 μm 에서 발진 하는 데에 성공했으며[4-6], 최근에는 InP (100) 기판에 성장한 InAs/InAlGaAs 양자점과 In(Ga)As/InGaAsP 양자점을 이용해서 양자점 레이저를 만들어서 또 다른 광통신 파장대역인 1.5 μm 에서 실온에서 연속발진 하는 데에도 성공했다[7-8]. 이와 같이 양자점을 이용한 레이저에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있고, 최근에는 양자점 레이저의 특성을 좋게 하기 위한 노력도 함께 연구되고 있다.

최근에 발표된 결과에 의하면 p-type modulation doping을 통해서 양자점 레이저의 고속변조 성질을 좋게 하고[9], 실온 이상의 온도에서 양자점의 레이저의 기저상태의 이득을 증가시킬 수 있다는 결과가

나왔다[10]. 그 결과에 따르면, 유효질량이 상대적으로 작은 전자의 경우 양자점에서 conduction band의 에너지 레벨 간격이 커서 온도에 대해 덜 민감하거나 상대적으로 질량이 무거운 홀이 있는 valence band의 경우 에너지 간격이 매우 작아서 양자점에 운반자 들을 주입하였을 때 전자의 경우에 양자점의 기저상태에 위치하나 홀의 경우에는 thermal broadening에 의해서 기저상태에서의 이득이 전자에 비해 감소한다. 그리고 또한 홀의 경우에 최고이득 값이 온도에 매우 민감하게 된다. 이러한 문제점을 p-type doping을 통해서 극복할 수 있다.

본 연구에서는 레이저 구조로 InP (001) 기판에 성장한 p-modulation doped된 In(Ga)As/InGaAsP 양자점에서의 운반자 decay time에 대해 time-resolved PL (TR-PL)을 통해 살펴보았다. TR-PL 실험을 통해서 얻은 p-modulation doped된 양자점의 경우에 기저상태에서의 decay time이 undoped 양자점 시료에 비해 매우 짧은 값을 얻었다. 이 두 양자점 시료의 PL 세기와 decay time의 비교를 통해서 doping된 양자점의 기저상태에서의 짧은 lifetime은 doping에 의해 생성된 결함들 준위로서의 비발광 process의해 기인한다는 해석을 통해서 잘 설명할 수 있었다.

* [전자우편] ydjang@cnu.ac.kr

II. 시료구조 및 실험방법

본 실험에 사용된 시료는 metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) 으로 InP (001) 기판 위에 성장한 In(Ga)As/InGaAsP 양자점 시료이다. In(Ga)As 양자점의 발광파장을 맞추기 위해서 gallium을 0.6 %를 함께 넣어주었다. 또한 배리어는 InP와 격자정합을 이루고, 밴드 갭을 1.1 μm 에 맞추기 위해서 조성을 $\text{In}_{0.812}\text{Ga}_{0.188}\text{As}_{0.4}\text{P}_{0.6}$ 로 해서 성장했다. 그림 1에 양자점 시료 (QDP)에 대한 구조가 나와 있다. 비교를 위해 doping을 하지 않은 reference 시료 (QDI)도 함께 조사해 보았다. InP에 격자정합이 된 InGaAsP (1.1 μm) barrier 위에 In(Ga)As 양자점을 4주기를 성장했다. Spacer layer인 InGaAsP의 두께는 40 nm였고 그 중간에 20 nm의 두께로 modulation doping을 하였다. PL 측정은 Ar⁺ion laser를 사용해서 514.5 nm로 여기 시켰으며, 액체 질소로 cooling한 InGaAs-array detector를 통해 측정했다. 또한 시분해 PL (TR-PL)을 측정하기 위해서, 700 ~ 1000 nm의 파장을 변화시킬 수 있고 펄스폭의 펄스 폭과 76 MHz의 반복률을 갖는 Ti:Sapphire laser를 사용해서 750 nm로 barrier의 band-edge에서 충분히 높은 곳에 여기 시켰다. 측정은 4 ps의 시간 해상도를 갖는 Streak Camera를 통해서 했으며, 30 nm의 밴드 폭을 갖는 대역투과 필터를 사용해서 측정했다.

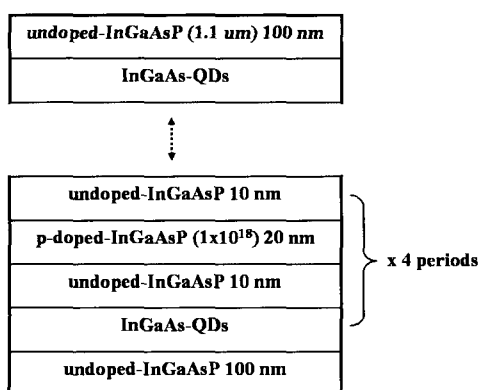


그림 1. P-modulation doping된 InGaAs/InGaAsP 양자점 (QDP)의 시료구조

III. 실험결과 및 분석

그림 2는 doping을 하지 않은 양자점 시료

(QDI)와 p-modulation doping을 한 양자점 시료 (QDP)의 10K-PL spectra이다. 두 시료의 PL peak은 모두 1400 nm 근처에 위치함을 볼 수 있다. 여기서 보여주지 않지만 실온에서는 1500 nm 근처에서 PL 신호가 나옴을 확인할 수 있었다.

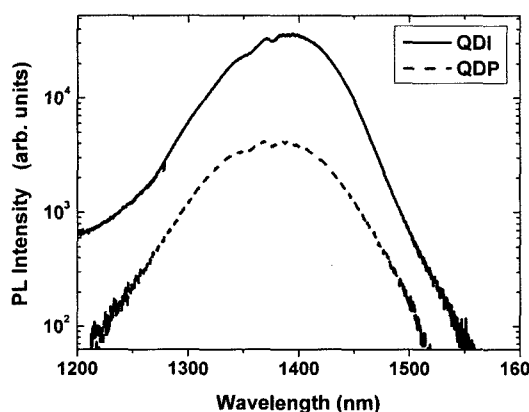


그림 2. Undoped 양자점 (QDI)과 p-doped 양자점 (QDP)의 10K-PL spectra

또한 그림 3과 4는 이 두 양자점 시료에 대한 10K에서의 여기세기 의존도 PL을 보여주고 있다. 여기 세기를 50 W/cm²에서 50 mW/cm²까지 변화시키면서 PL 신호를 측정했다. 그림에서 보여주는 경향은 In(Ga)As/InGaAsP 양자점 시료에서 보여주는 전형적인 경향이다. 여기 세기가 강할 경우에 짧은 파장 쪽으로의 PL의 tailing이 보이는데, 이는 두 가지로 해석할 수 있다. 여기상태 준위가 가깝게 있기 때문에, 기저상태 PL spectrum의 broadening에 문혀서 여기상태 준위가 보이지 않고 그냥 짧은 파장 쪽으로의 tailing과 peak shift만 보여준다고 해석이 가능하다. 이것을 확인하기 위해서는 반치폭 (FWHM)이 작도록 균일하게 양자점 시료를 만들어서 여기 세기 의존도를 보는 방법이 있다. 그러나 이 시료 외에 30 meV의 작은 FWHM을 갖는 같은 양자점 시료에 대해 여기 세기 의존도를 측정해 보았을 때 여기상태 PL신호를 볼 수 없었고 그림 3, 4에서 보여주는 경향과 같은 결과를 관측했다. 그와 같은 경우에는 여기상태 준위가 더 가깝게 있을 가능성도 있다. 그러나 InAs와 InP의 격자 부정합이 약 4 % 정도로 크기 때문에 여기상태 준위가 매우 가깝게 있을 가능성은 낮을 거라 예상된다.

한가지 다른 가능성은 다른 몇몇 group [11,12]

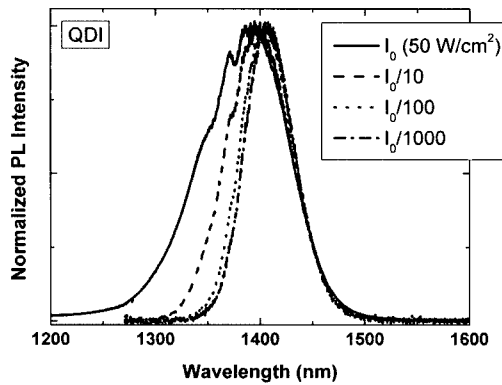


그림 3. Undoped 양자점 시료 (QDI)의 10K 여기세기 의존도 PL

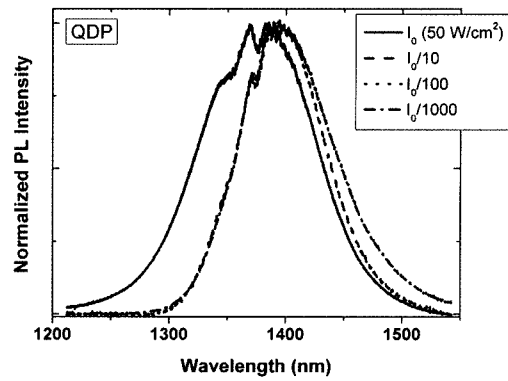


그림 4. p-doped 양자점 시료 (QDP)의 10K 여기세기 의존도 PL

에서 주장하는 wetting layer의 연속적인 에너지 레벨의 양자점 의로의 침투를 생각할 수 있다. 그 group들이 주장하는 것은 단일 양자점에 대해 PL excitation spectrum을 측정해서 양자점의 상태밀도가 에너지 준위가 있는 곳에서만 나타나고 나머지 부분에서는 0이 되어야 하나 실험 결과를 보면 실제로 양자점 안에서 상당부분이 양자점의 에너지 준위가 없는 곳에서 상태밀도가 0이 되지 않게 나타나는 spectrum을 관측했고, 이를 연속적인 에너지 준위의 양자점 안으로의 침투로 해석했다. 이러한 해석이 맞는다면 PL의 여기 세기 의존도를 측정하면 연속적인 상태밀도를 갖는 시스템에 대한 결과와 같은 경향성을 보여야 하고 우리의 결과도 그렇게 나온다. 어느 것이 맞는 해석인지는 아직 더 조사해 보아야 한다.

이 시료에 대한 운반자의 동역학을 알아보기 위해 TR-PL 실험을 하였다. 그러나 그림 2에서 보듯이 PL peak이 저온에서 1400 nm 근처에 있기 때문에 측정이 용이하지 못하다. Streak camera의 경우 1200 nm를 넘어가면서 효율이 지수함수적으로 급격하게 감소하기 때문이다. 그렇기 때문에 분광기를 함께 사용해서 측정을 해서 파장에 대한 정보도 함께 보는 방법을 포기 하고 파장에 대한 정보를 잃어버리는 대신에 신호의 세기의 감소를 최소화 하는 방법인 직접 streak camera 앞에 30 nm의 밴드폭을 갖는 대역투과 필터를 사용해서 측정을 했다. 측정은 각각 양자점 시료의 10K-PL peak (1400 nm)에서 했다.

그림 5는 undoped 양자점 시료 (QDI)와 p-doped 양자점 시료 (QDP)에 대한 10K 에서의 decay curves를 나타낸다. 그림에 나타난 결과는 doping

을 하지 않은 양자점 시료인 QDI의 decay time이 p-doping을 한 시료인 QDP에 비해 훨씬 길게 나옴을 볼 수 있었다.

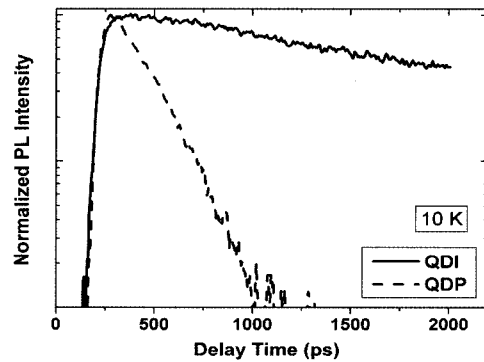


그림 5. 10K에서 측정한 undoped 양자점 (QDI)과 p-doped 양자점 (QDP)의 PL peak에서의 decay curves.

왜 이와 같은 결과를 보여주는지에 대한 해석은 아직 분명하지 않고 앞으로 더 연구해 보아야 할 것이다. Siegert et. al. 의 연구결과에 의하면[13], doping에 의해 생성된 결함들이 양자점 층 근처에 많이 존재하게 되고, 양자점의 기저상태에 있는 운반자들 모두가 양자점 안의 그 준위에서 빛을 내면서 결합 하는 것이 아니라 비발광 center인 결함 준위로의 운반자의 이동이 일어나기 때문에 기저상태에 있는 운반자들이 그 준위를 벗어나는 경로가 결합이 없을 때에 비해 더 많아지게 되고, 따라서 decay time이 짧게 나타나게 된다는 해석이다. 그러나 이와 같이 양자점의 기저상태에 있는 운반자들이 결함 준위로의 이동이 일어나기 위해서는 결합 준위가 양자점의 기저상태보다 더 낮은 에너지

상태에 있어야만 가능하다. 그러나 결함들이 있을 거라 예상되는 doping이 되어 있는 InGaAsP 층의 경우에 밴드 갭이 1.127 eV로 크지 않다. 이런 경우에 그렇게 deep level의 결함이 존재할 수 있는 가능성이 크지 않을 거라 생각된다. 그러한 경우에는 결함들이 존재한다고 하더라도 더 낮은 상태의 양자점의 기저상태에 있는 운반자들은 결함으로의 transfer를 하지 않을 것이고 따라서 결함에 의한 영향은 무시할 수 있다. 예를 들어 상대적으로 작은 밴드 갭을 갖는 GaAs (1.519 eV), InP (1.42 eV), 그리고 InAs (0.42 eV) 물질들의 경우에는 결함들의 binding 에너지가 수십 meV 정도로 작아서 대부분 shallow 결함들만이 존재한다. 그러나 상대적으로 큰 밴드 갭을 갖는 GaN (3.5 eV)의 경우에는 binding 에너지가 수백 에서 크게는 수천 meV를 갖는 deep level 결함들이 존재한다[14]. 그러나 아직까지 결함에 의한 비발광 결함 과정에 대해 물리적으로 잘 연구 되지 않았기 때문에 가능성은 낮다고 해도 아주 없다고 단정할 수 없다. 그래서 어떤 경로로든 그와 같이 doping에 의한 비발광 center들이 존재하고, 예를 들어 p-modulation doping을 한 경우에는 양의 전하는 갖는 Interstitial 결함 (I_{III})의 농도가 증가하게 된다[13], 그 비발광center의 에너지 준위가 양자점의 기저상태보다 낮은 에너지에 존재한다고 가정을 하면, 우리의 시료에서 얻은 결과를 설명할 수 있다. 또한 이 양자점 시료의 구조를 보면 결함들에 의한 비발광 center가 존재하는 doping 층과 양자점 층과는 10 nm 정도 밖에 떨어져 있지 않기 때문에 양자점의 기저상태의 파동함수가 충분히 doping 층이 있는 곳까지 침투가 있게 되고[15], 비발광 center와의 파동함수의 overlap이 존재하게 되어 양자점의 기저상태에 있는 운반자들이 비발광 center로의 이동이 가능하게 된다. 이와 같은 경우에는 decay time이 비발광 centers가 존재하지 않는 undoped 양자점 시료에 비해 양자점의 기저상태에서 운반자들이 사라지는 경로가 증가하게 되어 짧아지게 된다.

그와 같이 decay time이 짧아지는 영향이 실제로 비발광center의 영향이라는 것을 확인하기 위해서는 decay time 측정뿐만 아니라 PL spectrum도 확인을 해 보아야 한다. 결함들에 의한 비발광 center에 의한 영향은 PL spectrum의 세기에도 영향을 줄 것이다. 기저상태에서의 운반자들의 시간

에 따른 변화에 대한 rate equation을 생각해 보면, rate equation은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{dN}{dt} = G - \frac{N}{\tau} \tag{1}$$

여기서 N은 기저상태에서의 운반자의 개수이고, τ 는 decay time, G는 carrier의 generation rate이다. 이 식을 만족하기 위해서는 generation된 운반자들이 모두 양자점의 기저상태로 와야 한다는 가정이 필요하다. 여기상태 준위에 대한 효과는 G안에 모두 들어 있다. 여기서 decay time τ 는 $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}}$ 로 표시할 수 있다. 여기서 τ_r 은 발광 decay time이고 τ_{nr} 은 비발광 decay time을 나타낸다. 이 식에서 기저상태로 들어오는 운반자의 개수와 기저상태를 떠나는 운반자의 개수가 같아지는 정상상태 조건이 되게 되면, rate equation에서 $\frac{dN}{dt} = 0$ 이 되게 된다. 따라서 이때의 운반자 개수는

$$N = \tau G = \left(\frac{\tau_r \tau_{nr}}{\tau_r + \tau_{nr}} \right) G \tag{2}$$

가 되게 된다. 그런데, 우리가 측정하는 PL 세기, P는 다음과 같이 표시할 수 있다.

$$P = \frac{N}{\tau_r} = \left(\frac{\tau}{\tau_r} \right) G = \left(\frac{\tau_{nr}}{\tau_r + \tau_{nr}} \right) G \tag{3}$$

이 식을 보면 PL 세기와 decay time과는 밀접한 관계가 있음을 볼 수 있다. 발광 decay time이 일정한 경우에 결함들에 의한 비발광center가 증가하게 되면, τ_{nr} 은 짧아지게 되고 P의 마지막 식은 다음과 같게 근사 할 수 있다.

$$P \cong \frac{\tau_{nr}}{\tau_r} G \tag{4}$$

G는 일정하고, τ_r 도 일정하므로 PL 세기 P는 직접적으로 비발광 decay time에 의존하게 된다. 따라서 τ_{nr} 이 짧아지게 되면 그에 비례해서 PL 세

기도 작아져야 한다.

이러한 견지에서 우리 양자점 시료에 대한 결과를 해석해 보면, 먼저 그림 2의 PL spectrum을 보면, 여기 세기가 같은 조건에서 doping된 양자점 시료인 QDP의 PL 세기가 undoped 양자점 시료인 QDI에 비해 약 10배 정도가 줄어들었다. 그렇다면, decay time을 측정하게 되면, 앞에서 언급한 내용대로 만약 decay time의 차이가 doping에 의한 비발광 과정에 의한 효과라면 decay time도 역시 약 10배 정도가 줄어야 한다. 그림 5에서 fitting을 통해서 decay time을 구해 본 결과, doping이 되어있지 않은 양자점 시료인 QDI의 경우에 기저상태에서의 decay time은 1.5 ns를 얻었다. 반면에 doping을 한 양자점 시료인 QDP의 경우에 얻은 기저상태에서의 decay time은 170 ps 였다. 서로의 decay time 비를 보면 doping을 한 양자점 시료의 경우에 기저상태에서의 decay time이 약 10배 정도 짧게 나온다.

이 결과는 우리가 앞에서 전개한 해석적인 계산 결과와 잘 일치함을 알 수 있다. 따라서 본 양자점 시료에서 doping에 의해서 decay time이 짧아진 원인은 양자점의 기저상태에 있는 운반자들이 doping에 의해 생성된 결함들이 만드는 비발광 결합 center 로의 이동에 의한 운반자들의 손실 때문이라고 해석할 수 있다. p-doping에 의해 소자를 만들었을 때 온도특성이 좋은 장점이 있지만, doping에 의한 결함들의 증가로 양자점에 있는 운반자들의 손실이 생기게 된다. 그러나 doping 층과 양자점 층과의 거리를 잘 조절해서 양자점의 기저상태와 결함들 사이의 파동함수의 overlap이 생기지 않게 구조를 설계하게 되면, 설사 결함들이 존재한다고 해도 양자점 안에서의 운반자 손실은 막을 수 있으리라 예상할 수 있다. 그러나 이 파동함수 overlap이 없는 적절한 거리를 결정하는 것은 단순한 문제가 아니다. 결국 양자점의 기저상태의 파동함수의 침투를 줄여서 결함들과의 overlap을 막아야 하는데, 침투 정도를 결정하는 것은 양자점 층과 결함들이 있는 층과의 거리뿐만 아니라 배리어의 포텐셜 높이, 그리고 양자점의 모양에도 의존한다. 이 모든 조건들을 고려해서 doping 층의 위치를 결정해야 한다. 우리의 coupling에 대한 연구 결과에 의하면 InP위에 성장한 In(Ga)As/InGaAsP 양자점의 경우에 그 spacer 층의 두께가 40 nm 정

도가 되게 되면, coupling이 없는 것을 확인했다 [15]. 그러나 이 경우는 양자점 층간의 coupling을 조사한 경우이고, 양자점과 결함과의 coupling을 고려해 보면, 양자점 층과 doping 층 사이의 spacer 층의 두께가 달라질 수 있을 것이다.

IV. 결 론

InP (100) 기판 위에 성장한 p-modulation doping된 In(Ga)As/InGaAsP 양자점에 대해 doping이 되지 않은 양자점 시료와의 광학적인 특성을 PL과 TR-PL 실험을 통해 비교해 보았다. P-modulation doping된 양자점 시료의 PL 세기가 doping 되지 않은 양자점 시료에 비해 약 10배 정도가 약했고, TR-PL 실험을 통해서 얻은 PL-peak에서의 decay time은 170 ps 로서 doping되지 않은 양자점 시료의 1.5 ns에 비해 매우 빠르게 나옴을 얻을 수 있었다.

PL 세기비교 실험 결과와 decay time의 비교를 함께 고려해 본 결과, 그와 같이 doping된 양자점 시료의 짧은 decay time은 doping에 의해 유도된 양자점 층 주위의 결함 준위에 의한 비발광 centers의 영향으로 잘 설명되었다. 그러나 이와 같은 결과가 일반적인 결과라고는 말할 수 없고 doping 층의 위치 조정과 성장조건 변화에 의해 개선될 수 있을 사항이다.

감사의 글

본 논문은 2005년도 핵심기술 개발사업의 재원으로 산업자원부의 지원을 받아 수행한 연구입니다. 또한 특정기초 과제 (R01-2003-000-10268-0)의 재원으로 과학재단의 일부 지원을 받아 수행하였습니다.

참 고 문 헌

- [1] Y. Arakawa and H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [2] G. Park, O. B. Shchekin, D. L. Huffaker, and D. G. Deppe, *Electron. Lett.* **36**, 1283 (2000).
- [3] T. C. Newell, D. J. Bossert, A. Stinz, B. Fuchs, K. J. Malloy, and L. F. Lester,

- IEEE Photon. Technol. Lett. **11**, 1527 (1999).
- [4] F. Heinrichsdorff, Ch. Ribbat, M. Grundmann, and D. Bimberg, Appl. Phys. Lett. **76**, 556 (2000).
- [5] R. Krebs, F. Klopff, S. Rennon, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, Electron. Lett. **37**, 1223 (2001).
- [6] I. R. Sellers, H. Y. Liu, K. M. Groom, D. T. Childs, D. Robbins, T. J. Badcock, M. Hopkinson, D. J. Mowbray, and M. S. Skolnick, Electron. Lett. **40**, 1412 (2004).
- [7] J. W. Jang, S. H. Lee, I. C. Lee, W. G. Jeong, R. Stevensen, P. D. Dapkus, N. J. Kim, M. S. Hwang, and D. Lee, Appl. Phys. Lett. **85**, 3675 (2004).
- [8] J. S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, W. S. Han, H. S. Kwack, C. W. Lee, and D. K. Oh, IEEE Photon. Technol. Lett. **16**, 1607 (2004).
- [9] O. B. Shchekin and D. G. Deppe, Appl. Phys. Lett. **80**, 2758 (2002).
- [10] O. B. Shchekin and D. G. Deppe, Appl. Phys. Lett. **80**, 3277 (2002).
- [11] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett. **82**, 4114 (1999).
- [12] R. Oulton, J. J. Finley, A. I. Tartakovskii, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard, Phys. Rev. B **68**, 235301 (2003).
- [13] J. Siegert, S. Marcinkevicius, and Q. X. Zhao, Phys. Rev. B **72**, 085316 (2005).
- [14] *Semiconductors: Group IV Elements and III-V Compounds (Springer, Berlin, 1991)*.
- [15] Y. D. Jang, E. G. Lee, J. S. Yim, D. Lee, W. G. Jeong, S. H. Pyun, and J. W. Jang, Appl. Phys. Lett. (Accepted).

Carrier Dynamics of P-modulation Doped In(Ga)As/InGaAsP Quantum Dots

Y. D. Jang^{1*}, J. Park¹, D. Lee¹, S. U. Hong², and D. K. Oh²

¹*Department of Physics, Chungnam National University, Daejeon 305-764*

²*Electronics and Telecommunication Research Institute, Daejeon 305-350*

(Received February 10, 2006)

We have investigated optical properties of p-modulation doped In(Ga)As quantum dots (QDs) on InP substrate with a comparison with the undoped QDs. Photoluminescence (PL) intensity of doped QDs at 10 K was about 10 times weaker than that of undoped QD sample. The decay time of doped QD sample at its PL peak, obtained from the time-resolved PL (TR-PL) experiment at 10 K, was very fast compared to that of undoped sample. We interpret that this fast decay time of the doped QD sample comes from the addition of non-radiative recombination paths, which are originated from the doping-related defects.

Keywords : Quantum dots, Modulation doping, Decay time

* [E-mail] ydjang@cnu.ac.kr