



보안 기반 유선 양자 암호통신을 위한 반도체 양자점-광섬유 결합 연구

CsPbBr₃ 양자점-광섬유 결합 및
free form 중간 소자 설계를 통한 결합 최적화

과제번호 2023-2

초록

양자 알고리즘은 특정 문제에 대해 고전(classical) 알고리즘보다 우수한 계산 복잡도를 가진다. 특히, 쇼어(Shor) 알고리즘은 기존의 RSA(Rivest-Shamir-Adleman) 암호체계에 위협이 되고, 이에 대응하는 보안 체계인 QKD(quantum key distribution, 양자 키 분배)를 구현하려는 연구가 활발히 수행되고 있다. 본 연구의 목표는 우수한 발광 특성이 있는 CsPbBr₃ 페로브스카이트 양자점을 유선 양자 암호통신에 적용하는 것이다. 이를 위해 페로브스카이트 콜로이드 용액의 공정 조건을 변화시키며 Si 기판에 스핀 코팅하여 양자점 샘플을 제작하였다. 샘플의 상온 및 저온(~4 K) micro-PL(photoluminescence)을 측정하여 앙상블 양자점(ensemble QD)의 발광 특성을 확인하였으며, PDMS(polydimethylsiloxane) 물질과 광학 현미경을 이용하여 양자점-광섬유 결합을 시도하였다. 추가로, FDTD(finite difference time domain) 시뮬레이션을 통해 양자점-광섬유 결합 효율을 높일 수 있는 free form 중간 소자를 설계했다. 연구 결과는 페로브스카이트 양자점이 유선 통신에 사용될 수 있음을 시사한다. 향후 단일 양자점(single QD)을 확보하여 설계한 소자에 장착한다면 고효율의 광원-광섬유 결합을 갖는 유선 양자 암호 통신을 구현할 수 있을 것이다. 이는 궁극적으로 양자 기술 패권 경쟁시대에서 대한민국의 안보를 수호하는 데 이바지할 수 있으리라 판단된다.

KEYWORDS

페로브스카이트(perovskite), 양자점(quantum dot), 양자점-광섬유 결합(QD-fiber coupling), micro-photoluminescence, FDTD(finite difference time domain), adjoint optimization

01 서론

1. 연구배경

암호는 전쟁과 함께 발전해 왔으며, 승패를 결정짓는 데 중요한 역할을 한다. 적의 암호를 해독하여 움직임을 미리 파악하는 것은 수많은 전쟁의 양상을 바꾸었다. 제 1차 세계대전에서 미국의 참전이 대표적인 예시이다. 독일이 멕시코에 보낸 암호문은 영국에 의해 해독되어, 미국에 전달되었다. 암호문에는 멕시코가 미국에 대항하는 동맹을 수락한다면 승전 후 텍사스, 뉴멕시코, 애리조나 등 과거의 멕시코 영토를 수복하는 걸 돕겠다는 내용이 있었다. 이는 미국이 참전하는 계기가 되었고 전쟁의 양상은 바뀌었다. 제 2차 세계대전에서도 암호의 역할은 중요했다. 나치는 에니그마(Enigma)라 불리는 암호화 기계를 이용하여 아군에게 안정적으로 정보를 전달하고 연합국의 암호를 해독함으로써 전쟁 초반의 우위를 점했다. 연합국은 앨런 튜링(Alan Turing)을 중심으로 에니그마에 대항하여 암호 해독기, 튜링 봄브(Turing Bombe)를 개발하였고 나치의 암호 체계를 붕괴시킴으로써 승리에 한 발짝 다가섰다.

IT의 발전으로 암호 통신의 중요성은 더욱 부각되고 있다. 그러나 현대의 암호체계는 양자 컴퓨터의 태동으로 큰 위협에 직면했다. 근래에 빈번히 사용되는 RSA(Rivest-Shamir-Adleman) 암호의 안전성은 소인수분해 문제에 대한 컴퓨팅 알고리즘의 높은 계산 복잡도에 의존한다. 반면, 중첩, 얽힘과 같은 양자역학적 특성을 이용하는 양자 컴퓨터는 소인수분해 문제의 계산 복잡도를 획기적으로 낮출 수 있다. 만약, 큰 수의 소인수분해를 해결하기에 충분한 성능의 양자 컴퓨터가 개발된다면, RSA 암호체계의 안전성은 보장받지 못할 것이다. 암호

체계의 붕괴는 특히, 보안이 핵심인 국방에 큰 위협이 될 것이다.

모든 것을 꿰뚫는 창인 양자컴퓨터로부터 보안을 유지하기 위한 여러 기술이 연구되었다. 그중 양자역학적 원리를 이용하여 도청을 완전히 배제할 수 있고, 알고리즘을 이용한 공격이 불가능한 QKD(quantum key distribution, 양자 키 분배)는 차세대 암호 통신으로 주목받고 있다.[1, 2] 미국은 2003년 DARPA의 ‘Quantum Network Project’를 통해 세계 최초로 QKD 시험 통신망을 설치하였다.[3] 현재는 중국이 QKD 분야에서 세계적인 기술력을 가지고 있다. 2021년 중국과학기술대학(USTC)은 베이징과 상하이 사이에 2,000 km 규모의 QKD 네트워크를 구축하였음을 네이처에 발표했다.[4] 우리나라 역시, QKD 기술 개발에 박차를 가하고 있다. 2022년 국정과제에 QKD 암호 통신이 선정되었고, 12대 국가전략 기술로 양자 기술이 선정되는 등 국가적 차원에서 지원이 이루어지고 있다.

QKD의 이상적인 구현을 위해서는 첫 번째로, 일반적인 광원이 아닌 양자물리학적 특성을 가진 광원이 필요하다. Trapped ion, 레이저 펄스의 parametric down conversion, 반도체 양자점 등 다양한 플랫폼을 활용한 양자 광원 개발 연구가 진행되고 있다.[5] 하지만, 어떠한 플랫폼이 절대적 우위에 있지는 않기 때문에 양자 광원 구현을 위한 기반 연구가 지속되어야 한다. 두 번째로, 양자 광원을 전송할 수 있는 채널이 필요하다. 양자 광을 전송하는 방식으로는 무선 방식과 광섬유를 통해 전송하는 유선 방식이 있다. 무선 방식은 광섬유가 필요하지 않다는 장점이 있지만, 난류 등으로 인한 광 손실이 발생할 수 있다.[6] 반면, 유선 방식은 안정적으로

빛을 전송할 수 있지만, 광원-광섬유 결합에서 정보 손실을 줄이는 연구가 필요하다.[7]

본 연구의 목적은 우수한 발광 특성을 가지는 양자 광원인 CsPbBr₃ 페로브스카이트 양자점을 유선 양자 암호 통신에 적용하는 것이다. 양자점 샘플을 제작하기 위해 콜로이드 양자점의 공정 조건을 변화시키며 실리콘 기판에 스핀 코팅했다. 상온과 저온 micro-PL 측정을 통해 샘플의 발광 특성을 확인함으로써 CsPbBr₃ 양상블 양자점 확보를 입증했다. 이후, PDMS(polydimethylsiloxane) 물질과 광학 현미경을 사용하여 양자점-광섬유 결합을 시도하였고 결합 효율을 높일 수 있는 중간 소자를 FDTD(finite difference time domain) 시뮬레이션으로 설계하였다. 연구 결과는 페로브스카이트 양자점이 유선 통신에 사용될 수 있음을 시사한다. 향후 단일 양자점(single quantum dot)을 확보하여 연구 결과에 적용한다면 높은 효율의 유선 양자 암호 통신을 구현할 수 있을 것으로 기대된다. 이는 궁극적으로 양자 기술 패권 경쟁시대에서 자주국방을 실현하는 데 이바지할 것이다.

2. 이론적 배경

2.1. 단일 광자

QKD를 이론과 동일하게 구현하려면 단일 광자 광원이 필요하다. 이때 단일 광자는 맥스웰 방정식으로 기술되는 고전적인 전자기파가 아닌 양자물리학적 특성이 있는 광원이다. 본 챕터에서는 양자 광에 관한 설명을 다루었다. Correlation function은 확률 변수 간의 상관관계를 기술하기 위해 정의된 함수이다. 이는 전자기장의 상관관계를 나타내는 데도 사용될 수 있다. Second-order correlation function,

$g^{(2)}(\tau)$ 는 전자기장의 세기(intensity)에 관한 상관관계를 기술한다. 고전 전자기 이론을 토대로 정의한 $g^{(2)}(\tau)$ 는 식 (1)과 같다.

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle} \quad \dots(1)$$

위 식에서, $I(t) = |\epsilon^*(t)\epsilon(t)|$ 는 시간 t 에서 전자기장의 세기를 의미하고, 전기장 $\epsilon(t)$ 와 전기장의 켤레 복소수, $\epsilon^*(t)$ 의 곱으로 계산한다. 괄호 기호 $\langle \dots \rangle$ 는 물리량의 시간 평균값을 의미한다. 양자 광학 이론을 적용하여 $g^{(2)}(\tau)$ 를 계산하면 식 (2)와 같이 형태가 변한다.

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t+\tau)\hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t+\tau)\hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}^\dagger(t+\tau) \rangle^2} \quad \dots(2)$$

여기서, \hat{a} , \hat{a}^\dagger 는 각각 소멸 연산자(annihilation operator), 생성 연산자(creation operator)이다. 생성 연산자는 광자 수 상태(photon number state)를 하나 높이는 연산이고, $\hat{a}^\dagger|n\rangle = (n+1)^{1/2}|n+1\rangle$, 소멸 연산자는 광자 수 상태를 하나 낮추는 연산이다, $\hat{a}|n\rangle = n^{1/2}|n-1\rangle$.

빛을 $g^{(2)}(\tau)$ 에 따라 분류하면 bunched light, coherent light, anti-bunched light으로 나눌 수 있다. Bunched light은 $g^{(2)}(0) > 1$ 의 조건을 만족하는 빛으로, 여러 개의 광자가 뭉쳐서(bunched) 방출된다. Coherent light은 $g^{(2)}(\tau) = 1$ 을 가지는 빛이다. 방출되는 광자의 개수는 Poisson 분포를 따른다. Anti-bunched light은 $g^{(2)}(0) < 1$ 의 조건을 만족하는 빛으로, 특정한 시간 간격을 두고 광자가 조금씩 방출된다. $g^{(2)}(0) = 0$ 을 단일 광자라 하며, 광자가 하나씩만 방출된다. 고전 전자기 이론으로 $g^{(2)}(\tau)$ 를 계산하면 1 이상이다.[8] 따라서, anti-bunched light은 양자 물리학으로만 기술되는

현상임을 알 수 있다. 그림 1-1에서 anti-bunched, coherent, bunched, 세 가지 형태의 광자 흐름(photon stream)을 확인할 수 있다.

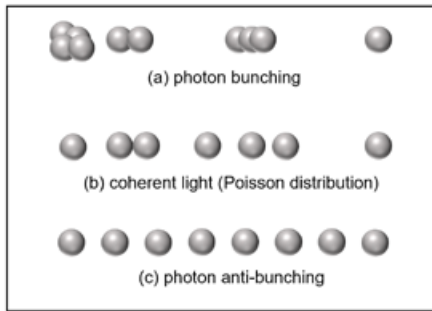


Fig 1-1. Anti-bunched, coherent, bunched light의 광자 흐름을 나타낸 그림이다. Anti-bunched light은 특정한 시간 간격을 두고 광자가 조금씩 방출되는 양자 광원의 특성을 가진다.

2.2. 단일 광자 광원 – CsPbBr₃ 양자점

연구에서는 단일 광자 광원으로 페로브스카이트 양자점을 사용하였다. 본 챕터에서는 양자점에 대해 간략히 설명하였다. 양자점(quantum dot, QD)은 nm 스케일의 반도체 입자이다. 이러한 나노 입자는 그림1-2.(a)와 같이 양자구속효과에 의해 상태밀도함수(DOS)가 델타함수와 같고 전자-홀 재결합에서 단일 광자 방출이 가능하다.^[5] 양자점을 제조하는 방법으로는 콜로이드 합성과 MOCVD(metal organic chemical vapor deposition)를 통한 에피택셜(epitaxial) 성장 등 다양한 방법이 있다. 그중 콜로이드 양자점(colloidal quantum dot, CQD)은 그림 1-2.(b)와 같이 core-shell-ligand 구조를 갖는, 20 nm 크기 이하의 QD가 콜로이드 상태로 용매에 분산된 것을 말한다. 이는 다른 방법에 비해 양자점을 쉽게 합성할 수 있다는 장점이 있다. CQDs에는 하나의 양자점 입자인 단일 양자점(single QD)과 여러 양자점이 뭉쳐 있는 앙상블(ensemble) 양자점이 있다. 단일 광자를

방출할 수 있는 것은 단일 양자점이기 때문에 실험에서는 앙상블을 배제하는 작업이 필요하다. 저온(~4 K) PL에서 단일, 앙상블 양자점 신호의 개형과 반치전폭(FWHM, full width at half maximum)에 분명한 차이가 나타난다.[9,10] 따라서 이들을 구분하려면 저온에서 micro-PL 측정(μm 스케일의 스캔 범위에서 PL 측정)을 해야 한다.

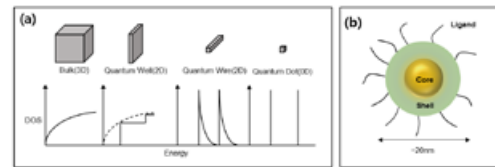


Fig 1-2. (a) Delta-function like DOS of QD. (b) CQD의 core-shell-ligands 구조.

페로브스카이트는 ABX_3 의 화학식을 가지는 물질이다. 여기서 X는 음이온, A와 B는 양이온이다.(A의 크기가 B보다 크다.) 페로브스카이트는 양자점으로 합성될 수 있다. 이의 일종인 CsPbBr_3 양자점은 큰 결함 내성(defect tolerance)을 가져 발광 양자수율(PL QY, photoluminescence quantum yield)이 거의 100%인 특성이 있다. 또한, 상온에서도 anti-bunched light을 방출할 수 있어 양자 광원으로 사용하려는 연구가 수행되었다.[11] 이에 본 연구에서는 유선 양자 암호 통신을 위한 단일 광자 광원으로 CsPbBr_3 CQDs를 채택하였다.

2.3. 양자 키 분배 (Quantum Key Distribution, QKD)

단일 광자 광원은 QKD에서 보안을 유지하는 역할을 한다. 본 챕터에서는 QKD를 구현하는 대표적인 프로토콜인 BB84 프로토콜을 소개하고, 단일 광자 광원을 사용하지 않으면 도청을 배제할 수 없음을 설명하였다. QKD를 설명하기

위해 Alice와 Bob, 두 사람이 정보를 교환하는 상황을 가정한다. 두 통신자가 암호화된 방식으로 안전하게 정보를 주고받기 위해서는 공개되지 않은 비밀 키를 분배하는 것이 필요하다. BB84 프로토콜에서는 편광된 빛에 정보를 encoding하여 키 분배를 수행한다. 전체적인 규칙은 그림 1-3과 같다. 송수신에 사용되는 편광 방향은 +와 ×이다. 편광 방향을 선택하는 것은 랜덤이며, 우연히 Alice와 Bob이 선택한 방향이 일치할 확률은 1/2이다. Alice는 편광 방향에 보내고자 하는 정보를 encoding하여 송신한다. Bob은 선택한 방향으로 광자를 측정하여 정보를 수신한다. 송수신이 끝나면 Alice와 Bob은 각자가 선택한 편광 방향을 고전 통신 채널로 공유하여, 같은 방향을 선택했을 때의 정보를 비밀 키로 사용한다. 그림 1-3에서는 '0111010100'이 비밀 키이다.

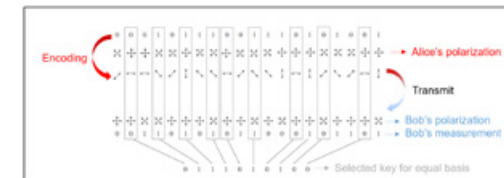


Fig 1-3. Alice와 Bob의 BB84 protocol 사용

이제 도청이 있는 상황을 고려하자. 양자 상태는 정보 복제가 불가능하여 Eve의 도청이 있으면 상태가 변하게 된다. 만약 도청이 있을 경우, Alice와 Bob이 선택한 편광 방향이 같아도 정보가 일치하지 않는 경우가 발생한다. 양자역학적 계산에 의하면 이 확률은 1/4이다.^[8] Alice와 Bob은 편광 방향이 일치하는 정보 중 일부를 공유하여 오류가 있는지 확인한다. 예를 들어 20개의 정보를 공유할 때, 오류가 발견되지 않을 확률은 $\left(\frac{3}{4}\right)^{20}$ 이므로 $1 - \left(\frac{3}{4}\right)^{20} \approx 99.683\%$ 의 확률로 도청을 감지할 수 있다. 한편, BB84 프로토콜은 단일 광자를

전송하지 않으면 도청을 감지하지 못할 수 있다. 여러 개의 광자를 보낼 경우, Eve가 일부의 광자를 취득하는 방식으로 양자 상태를 교란하지 않으면서 정보를 얻을 수 있다. 따라서 높은 수준의 보안을 가진 QKD를 구현하기 위해서는 단일 광자 광원이 필요하다.

2.4. 양자점-광섬유 결합

QKD를 온전히 구현하기 위해서는 단일 광자 광원은 물론, 양자 전송 채널도 고려해야 한다. QKD에서 양자 전송 채널을 구현하는 방식으로는 광섬유를 사용하는 유선 방식과 자유공간(free-space)으로 전송하는 무선 방식이 있다. 무선 방식은 광섬유 설치 비용을 절감할 수 있지만, 안개, 먼지 등 대기 중의 장애물로 전송 손실이 크게 발생할 수 있다. 손실을 상쇄하기 위해 양자 신호를 높일 경우, 여러 개의 광자가 전송되어 도청에 노출된다. 이에 비해, 유선 방식은 양자 신호를 안정적으로 전송할 수 있어 장거리 QKD 구현에 많이 사용되었다.[12]

유선 방식에서 광원-광섬유 결합을 설명하기 위해 광섬유 이론을 잠시 다루겠다. 일반적인 광섬유는 그림 1-4.(a)와 같이 중심으로부터 굴절률이 계단식으로 바뀌는 step index fiber이다. 광섬유의 내부를 코어(core), 외부 클래딩(cladding)이라 하고 코어의 굴절률을 n_1 , 클래딩의 굴절률을 n_2 라 하면 $n_1 > n_2$ 이다. $(n_1 - n_2)/n_1 \ll 1$ 근사가 성립하는 광섬유를 고려하겠다. 이러한 광섬유에서는 normalized waveguide parameter, $V = k_0 r_0 NA$ 에 따라 여기(excite)되는 모드가 다르다. 여기서 k_0, r_0 는 각각 진공에서 빛의 파수와 코어의 반지름을 의미한다. NA(numerical aperture), 개구수는 $(n_1^2 - n_2^2)^{1/2}$ 으로 그림 1-4.(b)와

같이 광섬유에서 전반사가 일어날 수 있는 최대 각도의 \sin 값이다. 광섬유에 형성되는 모드들은 그림 1-4.(c)의 아래쪽 그림과 같이 고유의 전기장 패턴을 가진다. V에 따른 모드의 normalized propagation constant, b의 변화는 그림 1-4.(c)의 위쪽 그래프와 같다. V값이 약 2.4048보다 작으면 광섬유에 LP_{01} 모드만 형성되는 single mode fiber(SMF)를 만들 수 있다. 이와 달리 여러 모드를 보낼 수 있는 광섬유를 multi-mode fiber(MMF)라 한다. 단일 광자 전송에 MMF를 사용할 경우, 광섬유에 존재하는 여러 모드 간의 간섭이 발생한다. 따라서 단일 광원을 전송하는 양자 채널로 SMF가 보통 사용된다.[13]

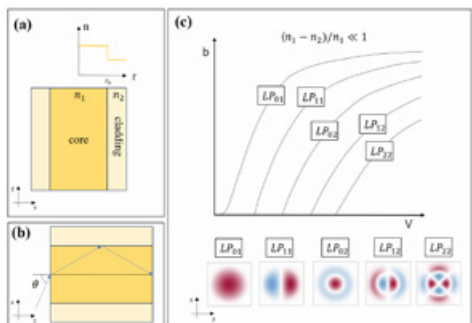


Fig 1-4. 광섬유에 관한 이론적 배경을 설명한 그림. (a) 일반적으로 사용되는 step index fiber이다. 중심에서부터 굴절률이 계단식으로 바뀌는 것이 특징이다. 광섬유의 내부를 코어, 외부를 클래딩이라 하는데, 코어의 굴절률이 클래딩의 굴절률보다 크다. (b) 빛이 광섬유를 통과하며 전반사하는 그림이다. θ 값을 높이다 보면 빛이 전반사할 수 있는 최대 각도가 있는데, 이의 \sin 을 취한 값이 광섬유의 NA, 개구수가 된다. (c) Step index fiber의 normalized waveguide parameter, $V = k_0 r_0 NA$ 에 따라 광섬유에서 여기되는 모드를 나타낸 그래프다. 여기서, k_0, r_0 는 각각 진공에서 빛의 파수와 코어의 반지름을 의미한다. 광섬유 단면에서 전기장 패턴은 아래 그림과 같이 모드에 따라 다르다.

SMF는 대체로 r_0 와 NA가 작다. 예를 들어 1260~1625 nm 파장에서 작동하는 SMF28 모델은 r_0 값이 8.2 μm , NA가 0.14이다. 이 때문에 SMF에 형성되는 모드는 사이즈가 매우 작다. 한편, 양자점은 Gaussian far-field 패턴을 가지지 않아 광섬유와 직접 연결하면 효율이

떨어진다.[7] 따라서 중간 소자를 장착하여 far-field 패턴을 SMF의 모드 사이즈에 맞게 바꿈으로써 광 추출 효율을 높이는 연구가 필요하다.

02 본론

1. 연구 방법

CsPbBr₃ 양자점을 유선 양자 암호통신에 적용하기 위해 두 가지 세부 목표를 설정했다. 첫째, 양자 광원의 성질을 가지는 CsPbBr₃ 단일 양자점을 확보한다. 둘째, 제작한 양자점을 광섬유에 결합하여 신호가 전달되는지 확인한다. 양자점은 CsPbBr₃ 콜로이드 양자점을 사용했다. 콜로이드 용액을 실리콘 기판에 스핀 코팅한 뒤 발광 특성을 분석했다. 이때 양상불 양자점이 아닌 단일 양자점을 검출하고자 용액을 희석하고 초음파 처리를 했다. 실리콘 기판에 코팅된 양자점의 발광 특성은 micro-PL 셋업을 통해 분석했다. 상온 micro-PL을 통해 발광 신호가 CsPbBr₃ 양자점임을 확인했다. 또한, 저온(~4 K) micro-PL 측정을 통해 샘플이 단일 양자점 혹은 양상불 양자점임을 판별했다. 광섬유와 양자점의 결합은 광학현미경과 PDMS 물질을 통해 이루어졌다. 결합 후 양자점이 방사하는 빛이 광섬유로 잘 전달되는지 PL측정을 통해 확인했다. 추가로, FDTD 시뮬레이션을 통해 결합 효율을 최적화할 수 있는 중간 소자를 설계했다.

1.1. Sample Fabrication

단일 양자점을 얻기 위해 여러 가지 공정 조건을 시도했다. 콜로이드 용액에 초음파 처리(sonication)를 하면 그림 2-1과 같이 입자의 뭉침이 덜했다. 이에 모든 샘플은 10분간의 초음파 처리 후 실리콘 기판에 스핀 코팅되었다.

또한, 콜로이드 용액의 희석도를 변화시키며 입자의 뭉침을 해결하고자 했다. 희석도(DF, dilution factor)는 원래 콜로이드 용액의 부피와 희석에 사용된 톨루엔(toluene)의 부피 비로 계산했다. 예를 들어, 샘플에 사용된 톨루엔의 부피가 콜로이드 용액의 부피보다 n배 크면 DF=n이고 샘플 이름은 ‘P1Tn’으로 명명했다. 제작한 샘플의 일부를 표 2-1에 정리하였다.

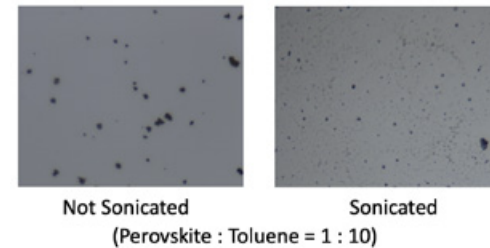


Fig 2-1. 초음파 처리의 여부에 따른 입자의 분산 (광학 현미경 이미지).

Sample Name	Perovskite(μl , P)	Toluene(ml, T)	P:T	Spin Coating Details (E)	Sonicated (10 min)
P1T1	1000 μl	1 ml	1:1	3000RPM 50 s ACC: 3 s STOP: 3 s	O
P1T10	100 μl	1 ml	1:10		
P1T100	10 μl	1 ml	1:100		
P1T1000	1 μl	1 ml	1:1000		
P1T10000	0.5 μl	5 ml	1:10000		
P1T100000	0.05 μl	5 ml	1:100000		

Fig 2-1. 제작한 샘플의 일부를 정리한 표

1.2. Micro-PL 측정

양자점 샘플의 micro-PL을 측정하기 위해 상온(그림 2-2)과 저온(그림 2-3) 측정 셋업을 구축했다. 405 nm CW(continuous wave) 레이저를 샘플에 투사했고, 스펙트로미터(Maya 2000 pro, Ocean Optics)를 통해 PL 스펙트럼을 측정했으며, CMOS(complementary metal oxide semiconductor) 카메라를 이용해 샘플의 광학 이미지를 얻어냈다. 상온 측정 셋업에서는 레이저가 대물 렌즈(objective lens)에 의해 집광 되어 샘플에 투사된다. 샘플에 반사된 레이저와 양자점이 방사한 빛은 CMOS 카메라에

투영되거나, 렌즈(lens)를 통해 집광 되어 detector(스펙트로미터)에 들어온다. 들어오는 과정에서 laser tail과 반사광을 줄이기 위해 dichroic mirror(<510 nm)를 설치했다. 저온 셋업 또한 레이저를 대물 렌즈로 모아 샘플에 투사하고 CMOS 카메라와 스펙트로미터를 통해 결과를 분석했다. 차이점은 샘플을 진공 챔버에 로딩하고 4 K까지 온도를 낮추어 진행했다. 또한, 압전 방식을 통해 μm 스케일로 샘플을 움직이며 PL을 측정했다.

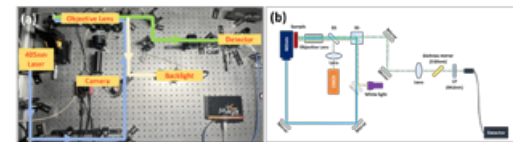


Fig 2-2. (a)상온 micro-PL 셋업 및 (b)셋업 모식도

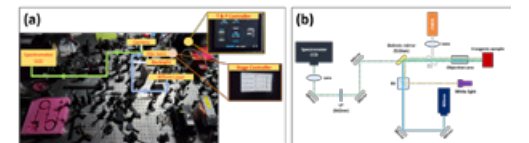


Fig 2-3. (a)저온 micro-PL 셋업 및 (b)셋업 모식도

1.3. 양자점-광섬유 결합 구현

Transfer 과정을 통해 양자점을 광섬유로 옮길 수 있다. 본 과정에서 사용한 장비는 그림 2-4에 명시하였다.

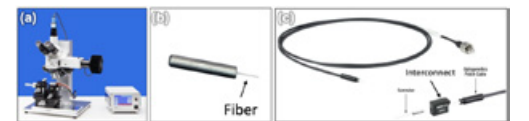


Fig 2-4. Transfer 장비. (a) Transfer 셋업(Manual transfer system: HQ2D MAN, HQ graphene)의 전체적인 모습이다. Transfer 시스템은 3차원 이동이 가능한 재물대, 광학 현미경 그리고 온도와 진공을 조절할 수 있는 컨트롤 박스로 구성된다. (b) 캐논러(fiber optic cannula: CFML21L02, Thorlabs)이다. 중심에 위치한 광섬유로 양자점을 Transfer 시켰다. (c) 광섬유(Ferrule patch cable: M63L01, Thorlabs)이다. Interconnect를 사용하면 캐논러와 연결할 수 있다. 양자점을 Transfer한 캐논러를 광섬유와 연결하여 양자점-광섬유 결합을 구현했다.

두 가지 방법으로 Transfer를 수행했다. 첫 번째 방법, Transfer 1은 샘플에서 양자점을

15 $\mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$ 크기의 PDMS에 붙이는 attaching과 이를 광섬유에 위치시키는 detaching으로 나뉜다. Attaching 과정은 다음과 같다. 광학 현미경을 통해 PDMS와 양자점의 초점을 조절하며 둘의 위치를 정렬한다. 재물대로 샘플의 높이를 조절하여 PDMS에 타겟 양자점을 접촉시킨다. 그림 2-5.(a)와 (b)에 해당 과정이 묘사되어 있다. 이후, 재물대에 캐놀러를 수직으로 세우고 내부에 있는 광섬유와 PDMS를 동일한 방법으로 정렬한다. 재물대로 높이를 조절하여 둘을 접촉시킨 뒤, 전단 응력(shear stress)를 가하여 양자점을 광섬유에 붙인다. Detaching 과정의 모식도는 그림 2-5.(c)와 (d)에서 확인할 수 있다. 그림 2-6은 연구팀이 Transfer 1을 수행하고 있는 모습이다.



Fig 2-5. Transfer 1 과정의 모식도

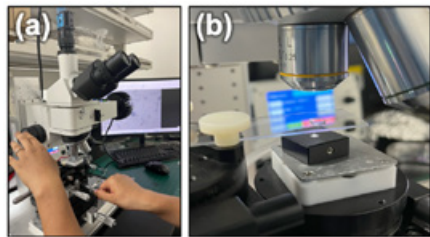


Fig 2-6. Transfer1 수행 과정. (a) 연구팀이 샘플 표면과 PDMS를 정렬하고 있다. (b) Detaching 과정에서 PDMS와 캐놀러를 정렬한 사진이다.

Transfer 1은 기술적인 난이도가 있기 때문에 간단하게 양자점을 광섬유에 결합하는 방법 또한 수행되었다. 콜로이드 용액에 캐놀러의 광섬유 부분을 직접 접촉하는 방식이다. 이를 Transfer 2라 명명하겠다. 그림 2-7에 해당 과정을 묘사하였다.

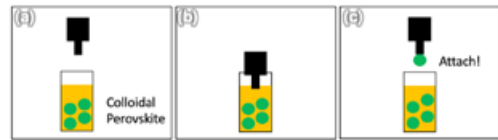


Fig 2-7. Transfer 2 과정의 모식도

Transfer 이후 그림 2-8의 PL 셋업을 통해 결합이 잘 구현되었는지 확인했다. 양자점을 Transfer한 캐놀러를 interconnect를 통해 광섬유와 연결한다. 캐놀러를 연결한 반대쪽에 스펙트로미터를 설치한다. 양자점을 레이저로 여기시키고 광섬유를 통과한 PL 신호가 CsPbBr₃ 양자점과 동일하면, 양자점-광섬유 결합을 구현한 것으로 판단했다. 추가로, Transfer로 인한 광섬유 표면의 변화를 SEM(scanning electron microscope)으로 관찰했다.



Fig 2-8. 양자점-광섬유 결합 확인을 위한 PL 측정 셋업

1.4. 결합 최적화를 위한 중간 소자 설계

양자점의 방사는 far-field 패턴이 Gaussian 형태로 나오지 않는다. 이 때문에 SMF와 결합할 때 광 손실이 발생한다. 서론에서 언급했듯, 고효율의 양자점-광섬유 결합을 구현하기 위해 중간 소자를 설치하여 양자점의 방사 패턴을 바꾸는 연구가 수행되었다.[7] 한편, 광소자의 기하학적 자유도를 높여 효율을 극대화하는 free-form design에 관한 연구가 활발히 수행되고 있다.[14] 본 연구에서는 집광 효율을 높이는 중간 소자를 free-form으로 설계하였다.

양자점의 방사를 dipole 방사로 근사하고 FDTD 오픈소스 소프트웨어인 Meep을 사용하여 전자기장 시뮬레이션을 수행했다.[15] 최적화 알고리즘은 Lorentz reciprocity를 이용하여 gradient를 낮은 계산 복잡도로 구할 수 있는

adjoint optimization을 사용했다.[16] 전체적인 시뮬레이션 상황은 그림 2-9.(a)와 같이 free-form grating의 정중앙에 양자점을 놓아 far field 패턴을 바꾼 뒤 광섬유를 통과시켜 광 추출 효율이 달라지는 양상을 확인했다. Free-form grating의 물질로는 SiO₂와 Si를 사용하였고 최적화 시뮬레이션은 그림 2-9.(b)와 같다. Far fields의 중앙에 모니터를 두어 해당 영역의 광 선속(flux)이 최대가 되도록 figure of merit를 설정했다. 설계한 소자가 결합 효율을 높일 수 있는지 확인하기 위해 그림 2-9.(c)의 양자점-광섬유 결합 시뮬레이션을 구현했다. 광섬유는 SMF28과 동일한 스펙을 가지도록 설정했다. 결합 효율을 비교하는 지표로는 core 내부를 통과하는 광 선속(flux)을 계산했다.

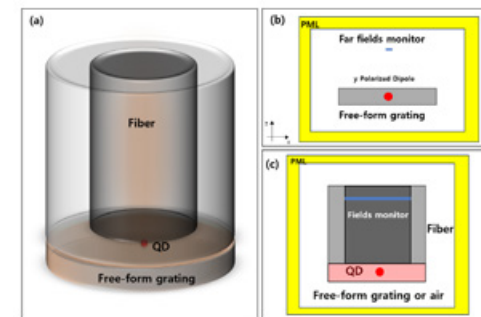


Fig 2-9. 전체적인 시뮬레이션 구조. (a) 양자점을 free-form grating 중앙에 놓아 far field 패턴을 바꾼 뒤 SMF를 통과시키는 그림이다. (b) 단일 양자점을 y 편광을 가진 dipole로 근사하였고 far field의 중앙의 광선속이 최대가 되도록 figure of merit를 설정했다. (c) 양자점-광섬유 결합 시뮬레이션이다. 배경 물질은 air를 사용했고 광섬유는 SMF28과 동일한 스펙을 가지도록 설정했다.

2. 연구 결과 및 논의

2.1. 양자점 샘플의 발광 특성 분석

실리콘 기판에 스핀 코팅한 양자점 샘플을 상온 micro-PL 셋업(그림 2-2 참조)으로 측정한 결과를 기술하겠다. 그림 2-10.(a)는 양자점 샘플을 PL 셋업의 CMOS 카메라로 촬영한

사진이다. 그림에서 검은색 점들이 양자점이다. 그림 2-10.(b)는 PL 스펙트럼 측정 결과이다. CsPbBr₃의 PL 스펙트럼은 2.43 eV 근처에서 봉우리(peak)를 가지는데, 그림 2-10.(b) 결과와 일치하므로 샘플은CsPbBr₃ 양자점이다. 추가로 P1T10, P1T100, P1T1000 샘플의 표면을 SEM으로 촬영하였다. 이미지에는 cubic 형태 입자들의 응집(aggregation)이 관측되었다. 이는 앙상블 양자점으로 추정되고, DF를 높이는 방법이 입자의 응집을 해결할 수 없는 것으로 사료된다.

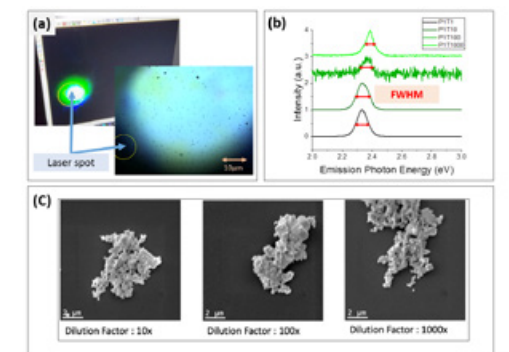


Fig 2-10. (a) 양자점 샘플의 광학 이미지. 사진 속 검은색 점들이 CsPbBr₃ 앙상블 양자점이다. (b) 콜로이드 CsPbBr₃ 원액(P)과 톨루엔(T) 희석 비율(P:T)에 따른, 양자점 샘플의 상온 micro-PL 측정 결과이다. (c) P1T10, P1T100, P1T1000 양자점 샘플의 SEM 이미지이다.

제작한 샘플이 단일 양자점인지 앙상블 양자점인지 구분하기 위해 저온 micro-PL 측정(그림 2-3 참조)을 수행했다. 그림 2-11.(a)는 저온(~4K)에서 측정된 P1T200샘플의 스펙트럼으로, 반치전폭이 0.02325 eV(Gaussian fitting 기준) 및 0.0188 eV(Lorentzian fitting 기준)로 측정이 되었다. 저온 micro-PL 결과 중 일부는 그림 2-11.(b)처럼 봉우리가 여러 개인 특이한 형태로 나타났다. 단일 양자점은 저온 PL에서 하나의 봉우리를 갖고 FWHM이 수 meV이다. 따라서 제작한 샘플은 CsPbBr₃ 앙상블 양자점임이 확인되었다. 연구에서 콜로이드

양자점 합성에 사용된 리간드(ligand)는 그림 2-11.(c)와 같이 OAm(oleylamine)과 OA(oleic acid)이다. OAm은 18개의 탄소 사슬을 갖는 분자인데, 긴 분자 길이로 인해 리간드 간의 반데르발스(Van Der Waals) 상호작용이 강하다. 이 때문에 DF를 높여도 양자점 간의 응집을 해결할 수 없었던 것으로 판단된다. 리간드에 변화를 주어 반데르발스 상호작용을 줄이고 단일 양자점을 확보하는 후속 연구가 필요하다.

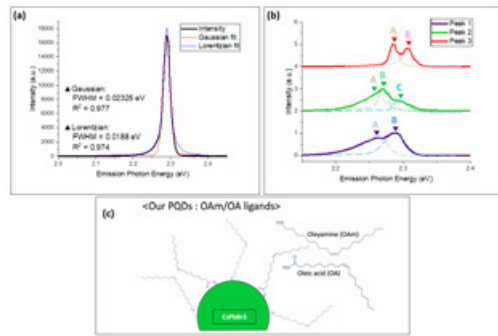


Fig 2-11. (a) P1T200 샘플의 저온 micro-PL 측정 결과 및 Gaussian, Lorentzian fitting 결과이다. (b) 저온 micro-PL 측정 결과 중 일부는 봉우리가 2개 이상인 형태로 나왔다. 이는 여러 개의 양자점이 중첩된 결과로 분석할 수 있다. (c) OAm과 OA 리간드를 가진 페로브스카이트 양자점을 나타낸 그림이다.

2.2. 양자점-광섬유 결합 및 중간 소자 설계 결과

Transfer 1과 Transfer 2의 결과를 기술하겠다. 그림 2-12와 그림 2-13은 Transfer 1 과정을 광학 현미경으로 찍은 사진이다. 모든 사진의 배율은 40배로 동일하였다. 그림 2-12의 (a), (b), (c), (d)는 Attaching 단계에 대한 광학 현미경 사진이다. (a)는 콜로이달 페로브스카이트 용액을 100배 희석한 P1T100 샘플을 40배 배율로 관찰한 사진이다. 검은색의 점입자가 앙상블 양자점이다. (b)는 PDMS 사진이다. 가운데에 있는 정사각형 형태의 밝은 입자가 PDMS다. (c)는 PDMS에 타겟 양자점을 부착하는 과정이다. 재물대를 조절하여 PDMS에 양자점이 부착되도록 압력을 가하여 색이 어둡게 변했다.

PDMS의 중앙에 타겟 입자가 위치한 것을 확인할 수 있다. (d)는 타겟 입자를 부착한 PDMS 사진이다.



Fig 2-12. Attaching 과정(광학 현미경 사진).

그림 2-13은 Detaching 과정이다. (a)는 캐논러 내부에 있는 광섬유 표면이다. (b)는 페로브스카이트 양자점이 붙어있는 PDMS와 fiber를 정렬한 사진이다. (c)는 PDMS와 코어를 접촉시킨 후, 전단 응력을 가해 양자점을 코어에 부착하는 과정을 찍은 사진이다. PDMS가 압력에 의해 어둡게 변한 것이 확인된다. (d)는 Transfer 1 과정 이후 광섬유의 모습이다. 코어 중앙에 검은색의 점입자가 추가된 것을 볼 수 있고, 이를 Transfer된 앙상블 양자점으로 추정하였다.

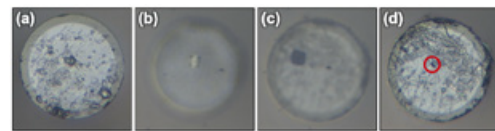


Fig 2-13. Detaching 과정(광학 현미경 사진).

그림 2-14는 Transfer 2 결과를 광학 현미경으로 찍은 사진이다. 마찬가지로 배율은 40배로 고정했다. (a)는 Transfer 2 이전 광섬유의 표면이고 (b)는 Transfer 2 이후 광섬유의 표면이다. (b)에서는 (a)와 달리 검은색 군집이 포착되었다. 군집 내에 앙상블 양자점이 있는 것으로 예상된다.

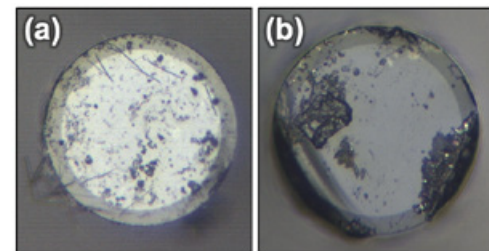


Fig 2-14. Transfer 2 전후 광섬유의 표면(광학 현미경 사진).

양자점-광섬유 결합의 PL 측정(그림 2-8 참조) 결과를 기술하겠다. Transfer 1 방법에서는 양자점의 PL 신호가 나타나지 않았다. 이는 양자점-광섬유 결합이 제대로 이루어지지 않았음을 의미한다. 연구 팀은 제작한 샘플(P1T100)을 광학 현미경으로 살펴보고 타겟을 직접 선택했다. 이때, 선택한 타겟이 페로브스카이트 양자점이 아니었을 가능성이 높다. Transfer 2 방법을 통한 양자점-광섬유 결합에서는 신호가 검출되었다. 그림 2-15가 그 결과이다. 2.33 eV(532 nm) 부근에서 피크(peak)가 있고 Gaussian 개형의 스펙트럼이 나왔다. 이는 CsPbBr₃ 앙상블 양자점이 방출하는 PL 스펙트럼과 일치하고 양자점-광섬유 결합이 성공적으로 구현되었음을 의미한다.

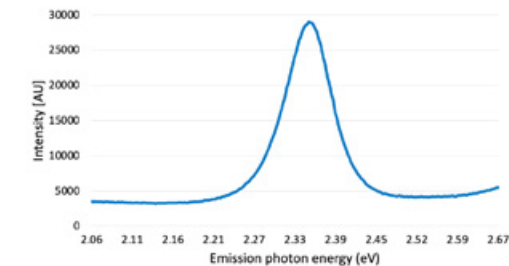


Fig 2-15. Transfer 2 방법의 PL 측정 결과

광학 현미경보다 정밀하게 표면을 확인할 수 있는 SEM을 활용하여, Transfer 전후 광섬유의 표면을 관찰하였다. 그림 2-16.(a)는 순수한 광섬유(bare fiber)의 모습이다. 시료 표면에 전자가 누적되는 charge-up 현상으로 인해 명확한 형태를 알아보기는 어렵지만, 표면 상태가 균일함은 확인할 수 있다. 그림 2-16.(b)는 Transfer 2 과정으로 제작된 광섬유이다. 코어의 특정 부분에서 정육면체(cubic) 형태의 입자들이 확인되었다. Transfer한 페로브스카이트 앙상블 양자점으로 추정된다. 그림 2-16.(c)는 Transfer 1 과정으로 제작된 광섬유이다. 표면에서 군집이

관측되었으나 공통적인 형상이 없었다. 이는 페로브스카이트 양자점이 아닌, 다른 입자가 Transfer 되었기 때문이고 PL 신호가 검출되지 않은 이유를 설명한다.

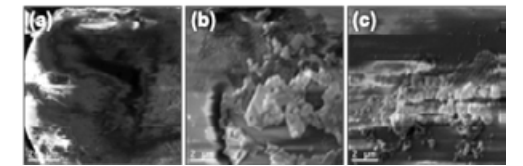


Fig 2-16. Transfer로 인한 광섬유 표면의 변화(SEM 사진).

마지막으로, 양자점-광섬유 결합 효율을 높이기 위한 중간 소자 설계 결과를 기술하겠다. Free-form으로 최적화한 소자의 모습은 그림 2-17.(a)와 같다. 회색은 SiO₂, 검은색은 Si이다. 소자의 형태는 원기둥 모양이고 양자점은 원기둥 중앙에 위치한다. 최적화가 잘 이루어졌는지 확인하기 위해 dipole이 위쪽으로 방출하는 전체 광선속과 far field에서 NA가 특정 값보다 작은 구간을 통과하는 광선속의 비율을 collection efficiency 지표로 삼았다. 여기서 NA는 그림 2-17.(b)에서 $NA = \sin \frac{\theta}{2}$ 이고 far field에서 NA가 특정 값보다 작은 영역은 파란색 영역이다. 그림 2-17.(c)는 NA에 따른 collection efficiency를 나타낸 그래프이다. 그래프에서 보이듯 동일 NA에서 collection efficiency는 air에 QD를 두는 것보다 free-form grating에 양자점을 두는 것이 더 높았다. 양자점-광섬유 결합 시뮬레이션 결과는 그림 2-17.(d)와 같다. 세로축은 코어를 통과하는 광선속이고 가로축은 광선속을 관측한 위치에서 dipole까지 거리이다. 광선속이 계속 변하는 이유는 FDTD로 SMF를 구현하는 과정에서 시뮬레이션 resolution의 한계로 MMF가 되었기 때문이다. SMF에 형성되는 LP₀₁ 모드를 광섬유 내부의 전기장과 overlap integral하면 모드 순도(purity)가

100%보다 낮게 나온다. 이는 구현한 광섬유가 MMF임을 입증한다. 그래프에서 보이듯 코어 내부 광선속은 평균적으로 free-form grating이 있는 경우가 높았다.

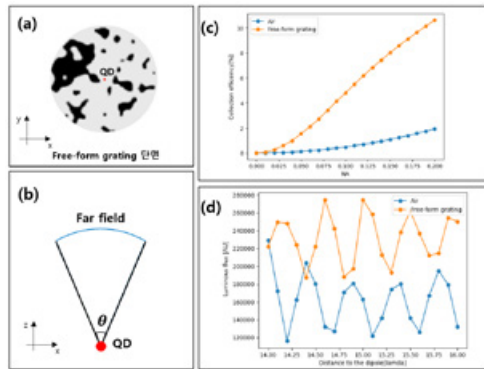


Fig 2-17. Free-form grating 최적화 결과. (a) 최적화된 free-form grating의 단면 사진이다. 회색 부분은 SiO₂, 검은색은 Si를 나타낸다. 원기둥 모양의 구조로 정중앙에 양자점이 놓여있다. (b) NA를 설명한 그림이다. Far field에서 특정 NA 이하를 가지는 구간은 파란색 영역이다. (c) Dipole에서 위쪽으로 방사하는 전체 광선속과 far field에서 특정 NA 이하를 가지는 구간을 통과하는 광선속의 비율을 collection efficiency로 명명하였다. NA축이 의미하는 것은 collection efficiency를 계산할 때 설정한 특정 NA 값이다. Collection efficiency는 free-form grating을 놓은 경우가 없는 경우보다 높다. (d) Dipole로부터 가로축만큼 떨어진 위치에서 광섬유의 코어를 통과하는 광선속을 나타낸 그래프이다. 시뮬레이션 구현 과정에서 SMF28이 MMF로 구현되었음을 확인할 수 있다. Free-form grating을 놓았을 때 광선속의 세기가 평균적으로 더 높았다.

03 결론

연구팀은 CsPbBr₃ 콜로이드 양자점을 Si 기판에 스핀 코팅하고 상온과 저온(~4 K)에서 micro-PL을 측정하여 양상불 양자점을 확보했다. 제작한 양상불 입자를 광섬유로 Transfer하였고 PL 측정을 통해 양자점-광섬유 결합을 입증했다. 나아가, 양자점-광섬유 결합에서 광손실을 감소시키는 중간 소자를 FDTD 시뮬레이션으로 설계했다. 연구 결과는 CsPbBr₃ 양자점이 유선

통신에 사용될 수 있음을 뒷받침한다. 또한, 설계한 소자를 활용하면 집광 성능을 높여 유선 통신의 효율을 향상시킬 수 있다.

후속 연구로 CsPbBr₃ 단일 양자점 확보가 필요하다. 8개의 짧은 탄소 사슬을 갖는 OLA(octylamine)를 리간드로 사용하여 반데르발스 상호작용을 감소시키고 양자점 간의 응집을 억제한 선행연구가 있다.[17] OLA 리간드 기반의 CsPbBr₃ 양자점으로 단일 양자점을 확보하고 HBT(Hanbury Brown and Twiss) 셋업을 통해 $g^{(2)}(0)$ 를 측정하면 단일 광자 광원을 선별할 수 있을 것이다.[8] 이후, 본 연구의 프로세스를 따른다면 유선 양자암호통신을 구현할 수 있으리라 기대된다. CsPbBr₃ 양자점을 사용하여 상온 구동이 가능하고 높은 결합 효율을 가지는 유선 양자암호통신 기술은, 양자 기술 패권 경쟁 시대에서 우리나라가 자주적으로 굳건한 안보를 실현하는 데 기여할 것이다.

04 감사의 말

본 연구는 과학기술전문사관 지원센터의 지원과 한국과학기술원 물리학과와 조용훈 교수님(지도교수), 김대식·김병수 연구멘토님, 해군사관학교 기초과학과의 민승식 교수님(멘토교수)의 지도를 받아 수행되었습니다. 이에 이 지면을 통해 감사드립니다.

05 참고문헌

- [1] Krelina, M. (2021). Quantum technology for military applications. EPJ Quantum Technology, 8(1), 24.
- [2] Bozzio, M., Vyvlecka, M., Cosacchi, M., Nawrath, C., Seidelmann, T., Loredo, J. C., ... & Walther, P. (2022). Enhancing quantum cryptography with quantum dot single-photon sources. npj Quantum Information, 8(1), 104.
- [3] Elliott, C., & Yeh, H. (2007). DARPA quantum network testbed. BBN TECHNOLOGIES CAMBRIDGE MA, Tech. Rep.
- [4] Chen, Y. A., Zhang, Q., et al. (2021). An integrated space-to-ground quantum communication network over 4,600 kilometers. Nature, 589(7841), 214-219.
- [5] Arakawa, Y., & Holmes, M. J. (2020). Progress in quantum-dot single photon sources for quantum information technologies: A broad spectrum overview. Applied Physics Reviews, 7(2).
- [6] Lu, Qi-Hang, et al. "Quantum key distribution over a channel with scattering." Physical Review Applied 17.3 (2022): 034045.
- [7] Jeon, W. B., Moon, J. S., Kim, K. Y., Ko, Y. H., Richardson, C. J., Waks, E., & Kim, J. H. (2022). Plug - and - Play Single - Photon Devices with Efficient Fiber - Quantum Dot Interface. Advanced Quantum Technologies, 5(10), 2200022.
- [8] Fox, A. M., & Fox, M. (2006). Quantum optics: an introduction (Vol. 15). Oxford university press.
- [9] Adl, H. P., Gorji, S., Munoz-Matutano, G., Sánchez-Alarcón, R. I., Abargues, R., Gualdrón-Reyes, A. F., ... & Martínez-Pastor, J. P. (2021). Homogeneous and inhomogeneous broadening in single perovskite nanocrystals investigated by micro-photoluminescence. Journal of Luminescence, 240, 118453.
- [10] Shinde, A., Gahlaut, R., & Mahamuni, S. (2017). Low-temperature photoluminescence studies of CsPbBr₃ quantum dots. The Journal of Physical Chemistry C, 121(27), 14872-14878.
- [11] Park, Y. S., Guo, S., Makarov, N. S., & Klimov, V. I. (2015). Room temperature single-photon emission from individual perovskite quantum dots. ACS nano, 9(10), 10386-10393.
- [12] Xu, F., Ma, X., Zhang, Q., Lo, H. K., & Pan, J. W. (2020). Secure quantum key distribution with realistic devices. Reviews of Modern Physics, 92(2), 025002.
- [13] Gisin, N., Ribordy, G., Tittel, W., & Zbinden, H. (2002). Quantum cryptography. Reviews of modern physics, 74(1), 145.
- [14] Park, J., Kim, S., Nam, D. W., Chung, H., Park, C. Y., & Jang, M. S. (2022). Free-form optimization of nanophotonic devices: from classical methods to deep learning. Nanophotonics, 11(9), 1809-1845.

[15] Oskooi, A. F., Roundy, D., Ibanescu, M., Bermel, P., Joannopoulos, J. D., & Johnson, S. G. (2010). MEEP: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method. *Computer Physics Communications*, 181(3), 687-702.

[16] Miller, O. D. (2012). *Photonic design: From fundamental solar cell physics to computational inverse design*. University of California, Berkeley.

[17] Xiong, Q., Huang, S., Du, J., Tang, X., Zeng, F., Liu, Z., ... & Leng, Y. (2020). Surface ligand engineering for CsPbBr₃ quantum dots aiming at aggregation suppression and amplified spontaneous emission improvement. *Advanced Optical Materials*, 8(20), 2000977.