



Cross-polarized reflectance-difference spectroscopy on CuPt ordered $Al_xGa_{1-x}InP$

HL 12.33

Tino Hofmann¹, Mathias Schubert¹, Bernd Rheinländer¹, Ines Pietzonka² und Volker Gottschalch²

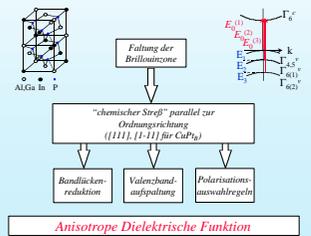
¹Fakultät für Physik und Geowissenschaften, Halbleiterphysik, Universität Leipzig, Linnéstraße 5, D-04103 Leipzig

²Fakultät für Chemie und Mineralogie, Halbleiterchemie, Universität Leipzig, Linnéstraße 3, D-04103 Leipzig

Einleitung und Motivation

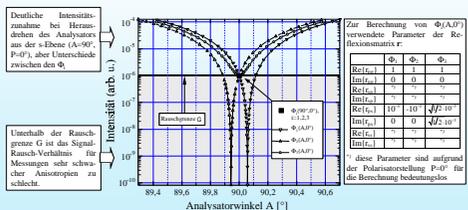
Spontane CuPt-Ordnung in III-V Halbleitern verursacht Bandlückenmodifikation und Valenzbandaufspaltung. Damit verbunden ist das Auftreten einer Doppelbrechung, deren Ursache die „chemische Verspannung“ der aufeinanderfolgenden Supergitter ist. Die ordnungsinduzierten optischen Eigenschaften sind mit denen der Piezo-Doppelbrechung eng verknüpft. Die Anisotropie dieser bischalen Verspannung ist direkt mit den elektronischen Eigenschaften der spontan geordneten MOVPE-Schichten verbunden. Die Bestimmung der Bandlückenenergien anhand der CuPt-Ordnungs-Doppelbrechung von spontan geordnetem AlGaInP ist Ziel der Untersuchungen. Wir verwenden eine neu entwickelte Reflexions-Differenz-Methode zur Messung der lichtschwachen CuPt-Ordnungs-Doppelbrechung.

„Optical fingerprints“ der CuPt-Ordnung



Reflektivität als Funktion des Analysatorwinkels

Der Verlauf von R wurde für verschiedene Probenanordnungen in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel berechnet. Der Analysatorwinkel variiert symmetrisch um die Einfallsebene. Das Verhältnis von Haupt- zu Nebendiagonalelementen der Reflexionsmatrix ist charakteristisch für Doppelbrechung in CuPt-geordnetem AlGaInP.



Die anisotropen Seraphin Koeffizienten für CuPt-geordnete Strukturen

Die normierten Reflexions-Matrixelemente sind in erster Näherung in $\Delta\epsilon$ proportional zur Ordnungs-Doppelbrechung $\Delta\epsilon = 1/3\epsilon_{\parallel} - 1/3\epsilon_{\perp}$. Es gilt:

$$R_{pp} = \beta_{\parallel}(\beta_{\parallel} + \beta_{\perp}) + \alpha(\beta_{\parallel}^2)$$

$$R_{pp} = \beta_{\parallel}(\beta_{\parallel} + \beta_{\perp}) + \alpha(\beta_{\parallel}^2)$$

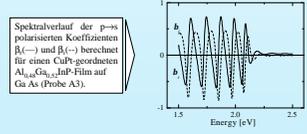
Die Koeffizienten β_{\parallel} werden dabei in Anlehnung an die Modulations-spektroskopie als SERAPHIN-Koeffizienten bezeichnet. Die Beträge der ordnungsinduzierten Doppelbrechung $\Delta\epsilon$ müssen klein gegenüber den mittleren ϵ -Werten sein. Die normierten JONES-Matrixelemente R_{ij} lassen sich direkt aus der allgemeinen 4x4-Transfermatrix T für anisotrope Schichtsysteme berechnen. Für die Berechnung von T ist die Kenntnis des Tensors der dielektrischen Funktion notwendig. Die Probe wurde so ausgerichtet, daß die [110] Richtung parallel zur x-Achse des Laborkoordinatensystems lag. Die [1-10] Richtung, die parallel zur Probenoberfläche ist, wurde $\phi = \pi/4$ aus der Einfallsebene heraus gedreht. Bei dieser Probenanordnung kann ϵ wie folgt ausgedrückt werden:

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{\parallel} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\perp} \end{pmatrix}$$

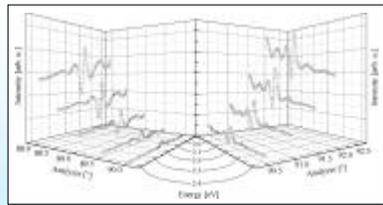
$$\epsilon_{\parallel} = \frac{(\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp})}{3}$$

$$\epsilon_{\perp} = \frac{2(\epsilon_{\parallel} + \epsilon_{\perp})}{3}$$

Aufgrund der Struktur dieses ϵ -Tensors sind die nicht verschwindenden Elemente von T entweder unabhängig, proportional zu $\Delta\epsilon$ oder von Typ a + $\Delta\epsilon$ b. Dadurch ist die Faktorisierung von R_{pp} in $\Delta\epsilon$ und β_{\parallel} möglich.



Reflektivität als Funktion des Analysatorwinkels von $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$



Die anisotropen Beiträge der Probenreflektivität führen zur Antisymmetrie der detektierten Intensität bei symmetrischen Analysatorstellungen. Die isotropen Beiträge sind symmetrisch und heben sich daher bei der Bildung von Differenzen weg. Um die anisotropen von den isotropen Beiträgen zu unterscheiden, müssen die isotropen Beiträge (r_{pp} , $r_{\perp\perp}$) unterdrückt werden. Das erfolgt hier durch geeignete Orientierungen von Polarisator und Analysator.

Die Differenzenmethode

a) Die Bestimmung von $Re(r_{pp}, r_{\perp\perp})$:
Analysator und Polarisator werden nacheinander um einen Winkel α und $\alpha + \pi$ aus der p- und -Ebene herangedreht. Für die vier unterschiedlichen P-A-Positionen kann $Re(r_{pp}, r_{\perp\perp})$ bestimmt werden. Da die Winkel α und $\alpha + \pi$ klein sind, ist die durchgeführte Linearisierung der in $\Phi(A, P)$ auftauchenden Winkelfunktionen gestattet. Man erhält:

$$\Phi(0^\circ + \alpha, 90^\circ + \gamma) - \Phi(0^\circ - \alpha, 90^\circ + \gamma) = 4\alpha \cdot Re(r_{pp}) - 4\alpha\gamma \cdot Re(r_{\perp\perp}) = R_1$$

$$\Phi(0^\circ + \alpha, 90^\circ + \gamma) - \Phi(0^\circ - \alpha, 90^\circ - \gamma) = -4\gamma \cdot Re(r_{pp}) + 4\alpha \cdot Re(r_{\perp\perp}) = R_2$$

$$\Phi(0^\circ + \alpha, 90^\circ + \gamma) - \Phi(0^\circ + \alpha, 90^\circ - \gamma) = 4\gamma \cdot Re(r_{pp}) + 4\alpha\gamma \cdot Re(r_{\perp\perp}) = R_3$$

Falls wir noch $\alpha + \pi$ setzen, erhalten wir mit Hilfe dieser Differenzen durch Subtrahieren und anschließendes Normieren mit $\alpha_{\text{norm}} = \Phi(A - 90^\circ, P - 90^\circ)$:

$$Re(r_{pp}) = \frac{1}{4} [\Phi(0^\circ + \alpha, 90^\circ + \gamma) + \Phi(0^\circ - \alpha, 90^\circ + \gamma) - \Phi(0^\circ + \alpha, 90^\circ - \gamma) - \Phi(0^\circ - \alpha, 90^\circ - \gamma)]$$

b) Die Bestimmung von $Re(r_{\perp\perp}, r_{pp})$:
Hier geht man analog zu a) vor und erhält unter Beachtung von $A - 90^\circ, P - 0^\circ$:

$$Re(r_{\perp\perp}) = \frac{1}{4} [\Phi(90^\circ - \alpha, 0^\circ + \gamma) + \Phi(90^\circ - \alpha, 0^\circ - \gamma) - \Phi(90^\circ + \alpha, 0^\circ + \gamma) - \Phi(90^\circ + \alpha, 0^\circ - \gamma)]$$

Das quasi-kubische Modell

In Abhängigkeit vom Ordnungsparameter η gilt:

$$\mathbf{D} = \mathbf{E}^{(0)} - \mathbf{E}^{(0-0)}$$

$$\mathbf{D} = \mathbf{E}^{(0)} - \mathbf{E}^{(0-1)}$$

Hierbei ist $\Delta\epsilon_{\text{eff}}^{(0-1)}$ die maximale Bandlückenreduktion im Vergleich zum ungeordneten Material. Die Valenzbandaufspaltung δE_{V} an der Spitze des Valenzbandes für CuPt-Ordnung kann mit Hilfe des quasi-kubischen Modells beschrieben werden:

$$\delta E_{\text{V}} = \frac{1}{2} (\mathbf{D}_{\text{V}} + \mathbf{D}_{\text{B}}) - \frac{1}{2} (\mathbf{D}_{\text{V}} + \mathbf{D}_{\text{B}}) \cdot \frac{8}{3} \mathbf{D}_{\text{V}} \mathbf{D}_{\text{B}}$$

$$\delta E_{\text{V}} = \frac{1}{2} (\mathbf{D}_{\text{V}} + \mathbf{D}_{\text{B}}) + \frac{1}{2} (\mathbf{D}_{\text{V}} + \mathbf{D}_{\text{B}}) \cdot \frac{8}{3} \mathbf{D}_{\text{V}} \mathbf{D}_{\text{B}}$$

$$\delta E_{\text{V}} = \frac{1}{2} (\mathbf{D}_{\text{V}} + \mathbf{D}_{\text{B}}) - \frac{8}{3} \mathbf{D}_{\text{V}} \mathbf{D}_{\text{B}}$$

Dabei sind Δ_{V} und Δ_{B} die Parameter der Spin-Bahn und Kristallfeld-Aufspaltung. In Abhängigkeit von η erhält man:

$$\mathbf{D}_{\text{V}} = \delta \mathbf{D}_{\text{V}}^{(0)} \eta^2$$

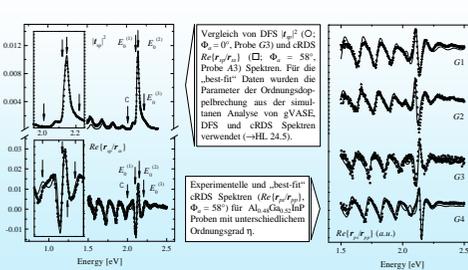
$$\mathbf{D}_{\text{B}} = \mathbf{D}_{\text{B}}^{(0)} + \delta \mathbf{D}_{\text{B}}^{(0)} \eta^2$$

Die in folgenden Tabelle aufgeführten Parameter des quasi-kubischen Modells für CuPt geordnetem $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$ sind die Ergebnisse simultaner Analyse der im weiteren abgebildeten cRDS und DFS-Daten.

	diese Arbeit	Referenzen
$E_{\text{V}}^{(0)}$ [eV]	2.195 ± 0.005	2.199 ¹
$\Delta_{\text{V}}^{(0)}$ [meV]	78 ± 5	92 ²
$\Delta_{\text{B}}^{(0)}$ [meV]	0 ± 0.05	0.06 ³
$\delta \Delta_{\text{B}}^{(0)}$ [meV]	0.33 ± 0.02	0.23 ⁴

¹E_V(V) = 9.4757(0.114) (Ref. 5)
²Abweichung zwischen den T₁ und T₂ Zuständen von CuPt₂ (Ref. 2)
³Lineare Interpolation zwischen GaInP und AlInP (Ref. 7)

cRDS und DFS-Daten von spontan geordnetem $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$



Vergleich von DFS $r_{\perp\perp}^{(0)}$ (\square , $\Phi_{\text{A}} = 0^\circ$, Probe G3) und cRDS $Re(r_{\perp\perp}, r_{pp})$ (\square , $\Phi_{\text{A}} = 58^\circ$, Probe A3) Spektren. Für die „best-fit“ Daten wurden die Parameter der Ordnungs-Doppelbrechung aus der simultanen Analyse von gVASE, DFS und cRDS Spektren verwendet (→ HL 24.5).

Experimentelle und „best-fit“ cRDS Spektren ($Re(r_{\perp\perp}, r_{pp})$, $\Phi_{\text{A}} = 58^\circ$) für $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$ (Probe mit unterschiedlichem Ordnungsgrad η).

Modell der dielektrischen Funktion für CuPt Ordnungs-Doppelbrechung

Die komplexe dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ CuPt-geordneter Strukturen läßt sich in Analogie zur Piezo-Doppelbrechung schreiben als:

$$\epsilon(\omega) \propto \epsilon^{(0)} + \sum_n \frac{A_n}{\omega_n^2 - \omega^2 - i\gamma_n}$$

Dabei bezieht sich der Index j auf die Polarisation und der Index i numeriert die Übergänge. Es wurde nur der Beitrag vertikaler F-Punkt Übergänge unter Annahme parabolischer Bänder berücksichtigt ($m=0$):

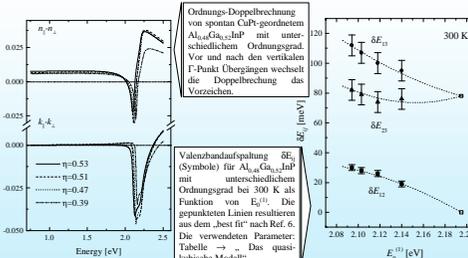
$$\epsilon^{(0)} = \epsilon^{(0)} + \sum_n \frac{A_n}{\omega_n^2 - \omega^2 - i\gamma_n}$$

Die verwendeten Parameter A_n , $\omega_n^{(0)}$ und $\epsilon^{(0)}$ bezeichnen die Stärke, Verbreiterung und Energie des Übergangs i am kritischen Punkt b bezogen auf die Polarisation $j = x, y, z$ der einfallenden elektromagnetischen Strahlung. Die Ordnungs-Doppelbrechung läßt sich ausdrücken als:

$$\Delta\epsilon = \delta\epsilon^{(0)} + \sum_n \frac{A_n^{(0)} - A_n^{(1)}}{\omega_n^{(0)} - \omega_n^{(1)}}$$

Die Indizes „0“ und „1“ beziehen sich auf die Polarisation parallel und senkrecht zur Ordnungsrichtung [111].

Ordnungs-Doppelbrechung von spontan geordnetem $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$



Ordnungs-Doppelbrechung von spontan CuPt-geordnetem $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$ mit unterschiedlichem Ordnungsgrad. Vor und nach den vertikalen F-Punkt Übergängen wechseln die Doppelbrechung das Vorzeichen.

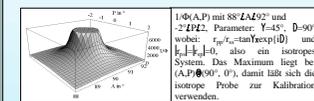
Valenzbandaufspaltung δE_{V} (Symbole) für $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$ mit unterschiedlichem Ordnungsgrad bei 300 K als Funktion von $E_{\text{V}}^{(0)}$. Die gepunkteten Linien resultieren aus dem „best fit“ nach Ref. 6. Die verwendeten Parameter Tabelle → „Das quasi-kubische Modell“.

Aufbau der Meßanordnung

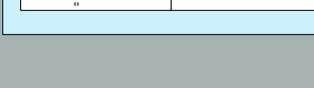
Eine Wolframdrath-Halogenlampe wurde als Lichtquelle eingesetzt. Als Polarisator und Analysator wurden schrittmotorgesteuerte Glas-Thompson-Prismen verwendet. Das reflektierte Licht wurde mit einem Photomultiplier phasenempfindlich detektiert. Der Reflexionswinkel wurde fest auf $\theta_{\text{r}} = 60^\circ$ eingestellt.

Kalibrierung der Anordnung

Das exakte Ausrichten von Polarisator und Analysator gegeneinander und relativ zur Einfallsebene ist für die Genauigkeit der Messungen entscheidend. Die Kalibrierung muß an einer isotropen Kalibrationsprobe, also nicht an der Meßprobe selbst, durchgeführt werden. Durch den notwendigen Probewechsel kann die Güte der Kalibration beeinträchtigt werden. Die Abbildungen zeigen für eine isotrop und eine schwach anisotrop gewählte Reflexionsmatrix r die Reflexivität in Abhängigkeit von Analysator- und Polarisatorwinkel. Nur bei der isotropen Probe ist die Position $A=90^\circ, P=0^\circ$ als Maximum erkennbar.



Wie obige Abbildung jedoch $r_{\perp\perp} = 0.03$, also ein schwach anisotropes System. Das Maximum nach $(A, P) = (90^\circ, 0^\circ)$, damit läßt sich die isotrope Probe zur Kalibrierung verwenden.



Zusammenfassung

Es wurde eine neue Untersuchungsmethode vorgestellt, die es ermöglicht, die Bandlückenenergien von schwach anisotropen Schichtsystemen in Reflexion zu bestimmen. Die beobachtete Doppelbrechung in spontan CuPt-geordnetem AlGaInP wurde als durch „chemischen Streß“ induzierte Piezo-Doppelbrechung interpretiert. Das Modell der dielektrischen Funktion für Piezo-Doppelbrechung in Zinkblende-Strukturen wurde erfolgreich zur Berechnung der Ordnungs-Doppelbrechung im Spektralbereich nahe der Bandlücke angewendet. Die ermittelten Parameter des quasi-kubischen Modells für $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$ stimmen ausgezeichnet mit den Berechnungen von Wei und Zunger überein.

Referenzen

- M. Schubert, B. Rheinländer, V. Gottschalch, "Band-gap reduction and valence band splitting in spontaneously ordered GaInP, studied by dark-field spectroscopy", Solid State Communications 95, No. 10, 723-727 (1995).
- M. Schubert, B. Rheinländer, E. Franke, I. Pietzonka, J. Skriminova, V. Gottschalch, "Direct-gap reduction and valence band splitting of ordered indirect-gap AlInP, studied by dark-field spectroscopy", Phys. Rev. B54, 17616 (1996).
- D. W. Bereman, "Optics in stratified and anisotropic media: 4x4 matrix formulation", J. Opt. Soc. Am. 62, 502-510 (1972).
- H. Wölter, M. Fritsch, G. Haas and D. A. Mykityk, "Fourier 4x4 matrix method for uniaxial inhomogeneous media", J. Opt. Soc. Am. AS, 1554-1557 (1988).
- M. Schubert, T. Hofmann, B. Rheinländer, I. Pietzonka, V. Gottschalch, T. Saff, „Near-band-gap CuPt-order-birefringence in $Al_{0.48}Ga_{0.52}InP$ “, Phys. Rev. B 60, 1957 (1999).
- S. H. Wei, D. B. Laks and A. Zunger, Appl. Phys. Lett. 62, 1937 (1993).
- S. H. Wei and A. Zunger, Phys. Rev. B37, 8983 (1988).
- S. Adachi, S. Ozaki, M. Sato and K. Ohtsuka, Jpn. J. Appl. Phys. 35, 537 (1996).
- C.W. Higginsham, M. Cardona and F.H. Pollak, Phys. Rev. 184, 821 (1969).