



Isotrope optische Konstanten von hochgradig ungeordnetem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{InP}$ ($0 \leq x \leq 1$) gitterangepaßt an GaAs*

G. Leibiger¹, M. Schubert^{1,3}, B. Rheinländer¹, I. Pietzonka² und V. Gottschalch²

¹ Universität Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften, Abteilung Halbleiterphysik, Linnestraße 5, 04103 Leipzig
² Universität Leipzig, Fakultät für Chemie und Mineralogie, Abteilung Festkörperchemie, Linnestraße 5, 04103 Leipzig
³ present address: Center for Microelectronics and Optical Materials Research and Department of Electrical Engineering, University of Nebraska, Lincoln, Nebraska 68588

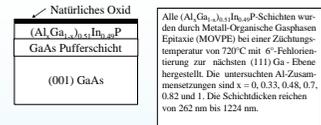
DPG-Frühjahrstagung, Poster HL 12.84
Münster, 22.03.-26.03.1999

* eingereicht bei J.Appl.Phys., Februar 1999

Motivation und Zielstellung

Durch Änderung der Zusammensetzung von quarternären III-V-Halbleitern lassen sich Materialeigenschaften wie z.B. Brechungsindex und fundamentale Bandlücke E_g in optoelektronischen Systemen über große Bereiche einstellen. Das System $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2(\text{In}_y\text{P})_2$ gitterangepaßt an GaAs wird in Laserdioden als aktive Schicht oder Barriere material verwendet [1]. Heute weiß man, daß in diesem System eine Art langreichweitige chemische Ordnung von CuPt-Typ auftreten kann [2,3]. Als Folge davon werden kritische Punkte der Bandstruktur energetisch verschoben bzw. aufgespalten, was die komplexe dielektrische Funktion $\epsilon(E) = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ verändert [4,5,6]. Es ist deshalb entscheidend, bei der Bestimmung der optischen Konstanten von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ das Ausmaß der Ordnung in den Proben zu berücksichtigen. Es wurde in der Literatur schon über verschiedene spektroskopische Untersuchungen von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ berichtet. Kato *et al.* [7] untersuchten durch MOVPE gezüchtete Proben mit spektroskopischer Ellipsometrie. Sie erhielten die x-Abhängigkeit der Energien der kritischen Punkte (KP) E_0 , E_1 und E_2 und ein Modell der dielektrischen Funktion (MDF) von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$. Diese MDF ist als Adachi's Modell bekannt [8,9]. Sie ist in einem großen Spektralbereich gültig, beschreibt jedoch das Verhalten der optischen Konstanten im Bereich um E_0 nur sehr ungenau. Adachi *et al.* [10] und Ozaki *et al.* [11] wendeten zusätzlich Thermo- bzw. Elektrokorrektur an. Sie erhielten die x-Abhängigkeit von KP-Energien. Ozaki *et al.* geben Modellparameter für $\epsilon(E,x)$ ($x = 0, 0.25, 0.5, 0.75$ und 1), wobei wie bei Kato *et al.* der Imaginärteil von $\epsilon(E,x)$ im Bereich unterhalb von E_0 zu groß ist bzw. nicht verschwindet. In allen drei Arbeiten könnte entsprechend den Züchtungsbedingungen die spontane Ordnung die Ergebnisse beeinflussen. Moser *et al.* [12] erhalten eine Parametrisierung des Brechungsindex $n(x)$ von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ für $x \leq 0.66$ und für Photonenenergien zwischen der Reststrahlbande und E_0 . Lee *et al.* [13] geben die x-Abhängigkeit der KP-Energien E_0 , E_1 , E_2 und E_g an, wobei sie keine spontane Ordnung in ihren Proben voraussetzen. In einer späteren Arbeit untersuchen Lee *et al.* [14] spontane Ordnung und Dotiergasdefekte in GaInP mittels Ellipsometrie. Ziel der Arbeit ist es, ein parametrisiertes Modell der optischen Konstanten des Systems $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ zu gewinnen, wobei der Ordnungsgrad in den untersuchten Proben möglichst klein sein sollte. Deshalb wurden Züchtungsbedingungen gewählt, die das Auftreten von spontaner Ordnung behindern. TEM und optische Anisotropieuntersuchungen bestätigen die hochgradige Unordnung der Proben.

Probeneigenschaften



Ellipsometrie

Ellipsometrie ist eine weitverbreitete Methode zur Bestimmung der komplexen dielektrischen Funktion $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$. Dabei werden die beiden ellipsometrischen Parameter Ψ und Δ gemessen, die durch $\rho = R_p/R_s = \tan\Psi \exp(i\Delta)$ gegeben sind. R_p und R_s sind die komplexen Fresnel'schen Reflexionskoeffizienten für parallel bzw. senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht. Unsere Proben wurden bei Zimmertemperatur im Energiebereich von 0.75 eV bis 5.0 eV mit einem Rotierenden-Analysator Ellipsometer (RAE) mit variablen Einfallswinkel und automatischem Phasenschieber gemessen.

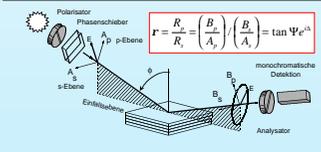
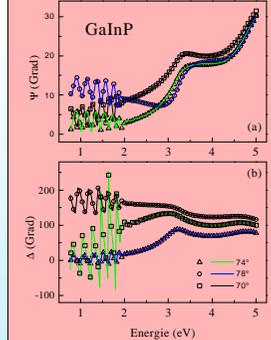


Abb. 1 Parameter Ψ und Δ



Ellipsometrische Parameter Ψ (a) und Δ (b) des Systems GaInP gitterangepaßt an GaAs für die Einfallswinkel 70°, 74° und 78°. Die Oszillationen unterhalb von E_0 sind auf Schichtdicken-Interferenzen zurückzuführen.

Bestimmung von $\epsilon(E,x)$

Um die komplexe dielektrische Funktion von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ zu erhalten, wurde ein Modell der dielektrischen Funktion aufgebaut, wobei für jede Schicht die optischen Konstanten als tabellierte Werte oder in Form einer parametrisierten Funktion vorliegen müssen. Zur Modellierung der dielektrischen Funktion von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ nutzen wir ein erweitertes Adachi-Modell (s.u.), während das natürliche Oxid mit einem Zöllner-Ansatz behandelt wird [15]. Für GaAs verwenden wir tabellierte Werte. Im Anschluß daran werden die Modellparameter aller 6 Proben gleichzeitig variiert (Multi-Prob-Analysis), bis experimentelle und simulierte Daten möglichst gut übereinstimmen. Für alle freien Modellparameter γ wird dabei eine quadratische Abhängigkeit von der Al-Zusammensetzung x angenommen.

$$\gamma = a_0 + a_1x + a_2x^2 \quad (1)$$

Die für γ , a_0 , a_1 und a_2 erhaltenen Werte sind in Tabelle 1 gegeben. Die für $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ Modell der dielektrischen Funktion basiert auf dem Ansatz der Interbandübergänge in Ein-Elektronen-Bild [8,9]. Es beinhaltet Terme der kritischen Punkte E_0 , $E_1 + B_0$, $E_2 + B_0$, E_2 und exzitonische Beiträge. In unserem Modell verwenden wir die E_0 und $E_2 + B_0$ Terme in unveränderter Form, während wir den exzitonischen Beitrag zu E_1 und den $E_2 - B_0$ Term, wie im folgenden erläutert, modifizieren. Der $E_2 - B_0$ Peak beinhaltet verschiedene Übergänge in der Brillouin-Zone [16] und wird durch einen gedämpften harmonischen Oszillator (DHO) beschrieben. Die DHO - Approximation führt jedoch zu Absorption unterhalb der Bandlücke. Gleiches gilt für die Lorentz - Funktion, mit der die exzitonischen Beiträge zu E_1 beschrieben werden. Um dies zu vermeiden verwenden wir eine Erweiterung zu Adachi's Modell, die kürzlich von Rakic und Majewski [17] vorgestellt wurde und auf einen Ansatz von Kim *et al.* [18] beruht. Dem folgend erweitert wir in den genannten Beiträgen die energie-konstante Verbreiterung F durch eine Gauß-artige Verbreiterungsfunktion

$$\tilde{\Gamma}_i = \Gamma_i \exp[-\xi_i(E - E_i)^2] \quad (2)$$

Rakic und Majewski benutzen diese Erweiterung, um die dielektrischen Funktionen von GaAs und AlAs sehr genau zu modellieren [17]. Als zweite Erweiterung setzen wir die Amplituden für die exzitonischen Beiträge zu E_1 und für den $E_2 - B_0$ Term komplex an. Dies geschieht unter der Voraussetzung, daß beide Beiträge ein Ensemble von Übergängen beschreiben. Das komplette Modell der dielektrischen Funktion (MDF) ist auf der nebenstehenden Seite zu sehen.

Modell der dielektrischen Funktion

Für $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ beinhaltet $\epsilon(E,x)$ Beiträge der kritischen Punkte (KP) E_0 ($\epsilon^{(0)}$), E_1 ($\epsilon^{(1)}$) und E_2 ($\epsilon^{(2)}$). Die E_1 - Struktur beinhaltet weiterhin einen exzitonischen Beitrag ($\epsilon^{(1*)}$). Zusammenfassend gilt:

$$\epsilon = \epsilon_{\infty} + \epsilon^{(0)} + \epsilon^{(1)} + \epsilon^{(1*)} + \epsilon^{(2)}$$

Der Term $\epsilon^{(1*)}$ berücksichtigt Fehler in den Konstanten bei der Kramers-Kronig-Integration:

$$\epsilon^{(1*)} = -A_1 \epsilon^{(1)} \ln(1 - \epsilon^{(1)})$$

Der E_2 - Übergang ist vom 3D - M_2 -Typ. Sein Beitrag zu $\epsilon(E)$ ist [9]

$$\epsilon^{(2)} = A_2 \epsilon^{(2)} [C_2]^{-2} = (1 - \epsilon^{(2)})^{-2} (1 - \epsilon^{(2)})^2 \quad (3)$$

mit $\chi = (E + \Gamma_2)/E_2$, $\Gamma_2 = 0, 1$ für Gleichung 3 bzw. 4. A_0 , A_1 und Γ_2 sind Amplitude, Übergangsenergie und Verbreiterung der E_2 KP-Struktur.

Der E_1 - Übergang ist vom 3D - M_1 -Typ. Da jedoch die longitudinale effektive Masse am M_1 - KP viel größer wie die transversale ist, ist kann man diesen KP als 2D - M_0 -Typ behandeln [9]. Sein Beitrag zu $\epsilon(E)$ ist gegeben durch

$$\epsilon^{(1)} = -A_1 \epsilon^{(1)} \ln(1 - \epsilon^{(1)}) \quad (4)$$

A_1 , E_1 und Γ_1 sind Amplitude, Übergangsenergie und Verbreiterung der E_1 KP-Struktur. Beiträge von Wannier 2D-Exzitonen werden direkt an der E_1 KP-Struktur betrachtet. Durch Exzitonen induzierte dielektrische Suszeptibilität wird durch eine gedämpfte Lorentz - Funktion mit komplexer Amplitude und energieabhängiger Verbreiterung approximiert [9,16]

$$\epsilon^{(1*)} = \frac{A_1 \exp(i\phi_1)}{E_1 - E - \Gamma_1 - i\epsilon_2 \exp[-\xi_1(E - E_1)^2]} \quad (5)$$

A_1 und ϕ_1 sind Betrag und Phase der komplexen Amplitude des exzitonischen Beitrags. Γ_1 und ξ_1 sind Amplitude und Verteilungsparameter der energieabhängigen Verbreiterung.

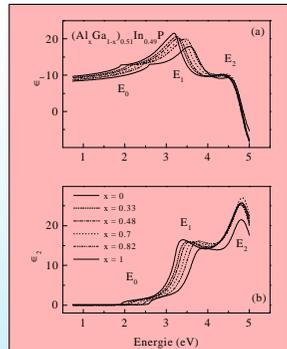
Die E_2 Struktur wird durch einen DHO mit komplexer Amplitude (A_2 , p_2) und energieabhängiger Verbreiterung (Γ_2 , ξ_2) beschrieben [9]

$$\epsilon^{(2)} = \frac{A_2 \exp(i\phi_2)}{E_2 - E - \Gamma_2 - i\epsilon_2 \exp[-\xi_2(E - E_2)^2]}$$

Tab.1 Parameter der MDF

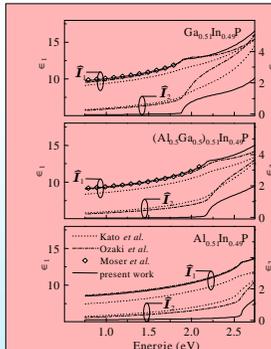
KP	Parameter	$a_0 + a_1x + a_2x^2$	a_1	a_2	b
	ϵ_{∞}	-0.12	-0.05	0.5	
0	E_0 (eV)	1.89	0.683	-0.21	
	A_0 (eV ²)	8.97	9.23	-0.90	
	Γ_0 (eV)	0.013	0.015	0.035	
1	E_1 (eV)	3.195	0.428	-0.30	
	A_1	5.53	-0.603	0.50	
	Γ_1 (eV)	0.128	0.014	0.043	
	A_0 (eV)	1.0	-0.037	0.66	
	Γ_1 (eV)	0.354	0.029	0.151	
	ξ_1	0.841	0.685	0	
	p_0	-0.528	0	0	
2	E_2 (eV)	4.865	0.035	-0.12	
	A_2	2.796	-0.691	-0.462	
	Γ_2	0.151	-0.037	0.018	
	ξ_2	0.906	0	0	
	p_2	0.044	0.046	-0.013	

Abb.2 Spektren der MDF



Dielektrische Funktion $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ von hochgradig ungeordnetem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ erhalten durch Multi-Prob-Analysis. [ϵ_1 : (a), ϵ_2 : (b)].

Abb. 3 E_0 -Bereich



Dielektrische Funktion [$\epsilon(E,x)$; $x = 0, 0.5, 1$] von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ im E_0 -Bereich (durchgezogene Linien). Als Vergleich sind die Ergebnisse von Kato *et al.* (Ref. 7, Punkte-Linie), Ozaki *et al.* (Ref. 11, Punkt-Strich-Linie) und Moser *et al.* (Ref. 12, Symbole) dargestellt.

Diskussion

Abbildung 2 zeigt $\epsilon(E,x)$ von hochgradig ungeordnetem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$. Die erhaltenen Funktionen können für beliebiges x mit Hilfe der angegebenen Modellfunktion (MDF) und der dazu gehörigen Parameter (Tab.1) produziert werden. Die E_0 , E_1 und E_2 - KP-Strukturen sind deutlich zu erkennen. Die E_0 und E_2 - Übergänge werden mit steigendem x zu höheren Energien verschoben (E_0 : 683 meV; E_2 : 421 meV), während die E_1 Peaks für GaInP und AlInP im wesentlichen anampheten. Die kompositionellen Abhängigkeiten der 3 KP-Energien sind

$$E_0(\text{eV}) = 1.899 + 0.683x - 0.12x(1-x) (\pm 2\%)$$

$$E_1(\text{eV}) = 3.224 + 0.428x - 0.13x(1-x) (\pm 2\%)$$

$$E_2(\text{eV}) = 4.832 + 0.03x(1-x) (\pm 2\%)$$

Die angegebenen Fehler sind kleiner als 2% bei 95% Sicherheit.

In Abb. 3 vergleichen wir die dielektrische Funktion im Bandlückenbereich (durchgezogene Linie) für $x = 0, 0.5$ und 1 mit den Ergebnissen von Moser *et al.* (Symbole) [12], Kato *et al.* (Punkt - Linie) [7] und Ozaki *et al.* (Punkt - Strich - Linie) [11]. Die von Moser *et al.* für $x \leq 0.66$ und für Energien $E < E_0$ erhaltenen Daten stimmen exzellent mit den unseren überein.

Ebenfalls gute Übereinstimmung kann man zwischen den ϵ_1 Werten von Ozaki *et al.* und denen unserer Arbeit beobachten. Wie bereits erwähnt, führt die MDF von Ozaki *et al.* zu unrealistischen Werten von ϵ_2 unterhalb E_0 .

Die von Kato *et al.* gefundenen optischen Daten stimmen weder mit denen von Moser *et al.* noch mit denen von Ozaki *et al.* noch mit den unseren überein. Die ϵ_2 -Werte von Kato *et al.* und von Ozaki *et al.* sind unterhalb von E_0 zu hoch.

Zusammenfassung

Es werden die dielektrische Funktion und die Parameter der kritischen Punkte von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{In}_y\text{P}$ mit spektroskopischer Ellipsometrie bei variablen Einfallswinkel bestimmt. Dazu wurden Proben ausgewählt, die keine oder nur sehr schwache ordnungsinduzierten Effekte, wie zusätzliche Supergitter - Streupunkte in der TEM oder Doppelbrechung, zeigen. Es wird ein parametrisiertes Modell der dielektrischen Funktion ($\epsilon(E,x)$) für $0 \leq x \leq 1$ und für Energien von 0.75 eV bis 5.0 eV vorgestellt, welches die an unseren Proben gemessenen ellipsometrischen Parameter exzellent reproduziert.

Literatur

- D. P. Bour, *Quantum Well Lasers*, ed. P.S. Zory, Jr. (Academic, Boston, 1993).
- G. B. Stringfellow, *MRS Bull.* **22**, 27 (1997).
- A. Zunger, *MRS Bull.* **22**, 20 (1997).
- S.-H. Wei and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **57**, 8983 (1998).
- S.-H. Wei, A. Franceschetti and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **51**, 13097 (1995).
- F. Alstina, M. Garriga, M. I. Alonso, J. Pascual, C. Geng, P. Ernst and F. Scholz, *Crypt. Res. Technol.* **31**, 205 (1996).
- H. Kim, S. Adachi, H. Nakashima and K. Ohnaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 186 (1994).
- S. Adachi, *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds* (Wiley-Interscience, New York, 1992).
- S. Adachi, T. Kimura and N. Suzuki, *J. Appl. Phys.* **74**, 1993 (1993).
- S. Adachi, S. Ozaki, M. Sato and K. Ohnaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 537 (1996).
- S. Ozaki, S. Adachi, M. Sato and K. Ohnaka, *J. Appl. Phys.* **79**, 493 (1996).
- M. Moser, R. Winterhoff, C. Geng, I. Queisser, F. Scholz and A. Dörnen, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 235 (1994).
- H. Lee, M. V. Klein, D. E. Aspnes, G. P. Kus, M. Peanasky and M. G. Crawford, *J. Appl. Phys.* **73**, 400 (1993).
- H. Lee, M. V. Klein, J. M. Olson, K. C. Hsieh, *Phys. Rev. B* **53**, 4015 (1996).
- S. Zöllner, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2523 (1993).
- P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors* (Springer, Berlin, 1995).
- A. D. Rakic and M. L. Majewski, *J. Appl. Phys.* **80**, 5909 (1996).
- C. C. Kim, J. W. Garland, H. Abad and P. M. Racch, *Phys. Rev. B* **45**, 1749 (1992).