



Isotrope optische Konstanten von hochgradig ungeordnetem $Al_xGa_{1-x}InP$ ($0 \leq x \leq 1$) gitterangepaßt an GaAs*

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

G. Leibiger ¹, M. Schubert ^{1,3}, B. Rheinländer ¹, I. Pietzonka ² und V. Gottschalch ²

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

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

Motivation und Zielstellung

Durch Änderung der Zusammensetzung von quartären III-V-Halbleitern lassen sich Materialeigenschaften wie z.B. Brechungsindex und fundamentale Bandlücke E_g in optoelektronischen Systemen über große Bereiche einstellen. Das System $(Al, Ga)_{1-x}In_xP$ gitterangepaßt an GaAs wird in Laserdioden als aktive Schicht oder Barrierematerial 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 $Al_xGa_{1-x}In_xP$ das Ausmaß der Ordnung in den Proben zu berücksichtigen. Es wurde in der Literatur schon über verschiedene spektroskopische Untersuchungen von $Al_xGa_{1-x}In_xP$ 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_1, E_2 und E_3 und ein Modell der dielektrischen Funktion (MDF) von $Al_xGa_{1-x}In_xP$. 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_g 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_g zu groß ist bzw. nicht verschwindet. In allen drei Arbeiten könnte entsprechend den Züchtungsbedingungen die spontane Ordnung der Erbinne beeinflusst haben. Moser *et al.* [12] erhalten eine Parametrisierung des Brechungsindex $n(E,x)$ von $Al_xGa_{1-x}In_xP$ für $x \leq 0.66$ und für Photonenenergien zwischen der Reststrahlenbande und E_g . Lee *et al.* [13] geben die x-Abhängigkeit der KP-Energien E_1, E_2 und E_3 an, wobei sie keine spontane Ordnung in ihren Proben voraussetzen. In einer späteren Arbeit untersuchen Lee *et al.* [14] spontane Ordnung und Dotierungseffekte in GaInP mittels Ellipsometrie. Ziel der Arbeit ist es, ein parametrisiertes Modell der optischen Konstanten des Systems $Al_xGa_{1-x}In_xP$ 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

Natürliches Oxid
 $(Al, Ga)_{1-x}In_xP$
GaAs Pufferschicht
(001) GaAs

Alle $(Al, Ga)_{1-x}In_xP$ -Schichten wurden durch Metall-Organische Gasphasen Epitaxie (MOVPE) bei einer Züchtungstemperatur von 720°C mit 6°-Fehlerrichtung zur nächsten (111) Ga-Ebene hergestellt. Die untersuchten Al-Zusammensetzungen sind $x = 0, 0.33, 0.48, 0.7, 0.82$ und 1 . Die Schichtdicken reichten von 262 nm bis 1224 nm.

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 Raumtemperatur im Energiebereich von 0.75 eV bis 5.0 eV mit einem Rotierenden-Analysator Ellipsometer (RAE) mit variablen Einfallswinkel und automatischem Phasenschieber gemessen.

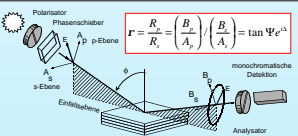
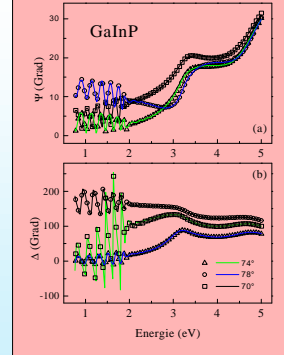


Abb. 1 Parameter Ψ und Δ



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_g sind auf Schichtdicken-Interferenzen zurückzuführen.

Bestimmung von $\epsilon(E,x)$

Um die komplexe dielektrische Funktion von $Al_xGa_{1-x}In_xP$ zu erhalten, wurde ein Modell der dielektrischen Funktion $\epsilon(E,x)$ 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 $Al_xGa_{1-x}In_xP$ 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 y wird dabei eine quadratische Abhängigkeit von der Al-Zusammensetzung x angenommen.

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

Die für f_1, a_2 und b erhaltenen Werte sind in Tabelle 1 gegeben. Die für f_2 und β erhaltenen Werte sind in Tabelle 1 gegeben. Die für f_2 und β erhaltenen Werte sind in Tabelle 1 gegeben. Die für f_2 und β erhaltenen Werte sind in Tabelle 1 gegeben.

Das komplexe Modell der dielektrischen Funktion (MDF) ist auf der nebenstehenden Seite zu sehen.

Modell der dielektrischen Funktion

Für $Al_xGa_{1-x}In_xP$ beinhaltet $\epsilon(E,x)$ Beiträge der kritischen Punkte (KP) E_1, E_2, E_3 ($\epsilon^{(1)}, \epsilon^{(2)}, \epsilon^{(3)}$). Die E_1 -Struktur beinhaltet weiterhin einen exzitonen Beitrag $\epsilon^{(ex)}$. Zusammenfassend gilt:

$$\epsilon = \epsilon_\infty + \epsilon^{(ex)} + \epsilon^{(1)} + \epsilon^{(2)} + \epsilon^{(3)} \quad (2)$$

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

$$\epsilon^{(ex)} = -A_{ex} \frac{\exp(-\alpha_{ex}(E - E_g))}{(E - E_g)} \quad (3)$$

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

$$\epsilon^{(2)} = A_2 \frac{\exp(-\alpha_2(E - E_2))}{(E - E_2)} \quad (4)$$

mit $\chi_2 = (E + \Gamma_2)/E_2$, Γ_2 ist die DHO-Approximation für die DHO von der Amplitude, Übergangsenergie und Verbreiterung der E_2 -KP-Struktur. Der E_3 -Übergang ist von 3D- M_2 -Typ. Da jedoch die longitudinale effektive Masse am M_2 -KP viel größer wie die transversale ist, ist kann diesen KP als 2D- M_2 -Typ behandeln [9]. Sein Beitrag zu $\epsilon(E)$ ist gegeben durch

$$\epsilon^{(3)} = A_3 \frac{\exp(-\alpha_3(E - E_3))}{(E - E_3)} \quad (5)$$

A_1, E_1 , and 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. Die durch Exzitonen induzierte dielektrische Suszeptibilität wird durch eine gedämpfte Lorentz-Funktion mit komplexer Amplitude und energieabhängiger Verbreiterung approximiert [9,16]

$$\epsilon^{(1)} = \frac{A_1 \exp(-\alpha_1(E - E_1))}{E_1 - E - \Gamma_1 - \beta_1 \exp(-\alpha_1(E - E_1))} \quad (6)$$

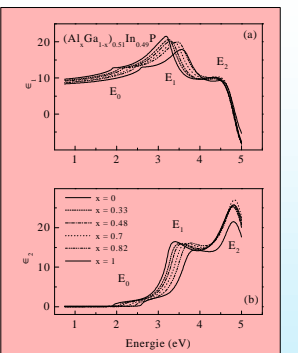
A_1, β_1 , und α_1 sind Betrag und Phase der komplexen Amplitude des exzitonen Beitrags. Γ_1 and α_1 sind Amplitude und Verteilungsparameter der energieabhängigen Verbreiterung. Die E_1 -Struktur wird durch einen DHO mit komplexer Amplitude (A_1, β_1) und energieabhängiger Verbreiterung (Γ_1, α_1) beschrieben [9]

$$\epsilon^{(1)} = \frac{A_1 \exp(-\alpha_1(E - E_1))}{E_1 - E - \Gamma_1 - \beta_1 \exp(-\alpha_1(E - E_1))} \quad (7)$$

Tab.1 Parameter der MDF

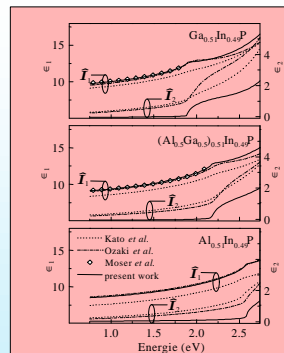
KP	Parameter	$a_0 + a_1x + a_2x^2$	b
0	ϵ_∞	-0.12	0.5
	E_1 (eV)	1.89	-0.21
	A_1 (eV ²)	8.97	-0.90
	Γ_1 (eV)	0.013	0.035
	β_1	0.000	0
1	E_1 (eV)	3.195	-0.30
	A_1	5.53	-0.50
	Γ_1 (eV)	0.128	0.043
	A_2 (eV)	1.0	0.66
	Γ_2 (eV)	0.354	0.151
	β_2	0.841	0
2	E_2 (eV)	4.865	-0.12
	A_2	2.796	-0.462
	Γ_2	0.151	0.018
	β_2	0.906	0
	β_3	0.044	-0.013

Abb.2 Spektren der MDF



Dielektrische Funktion $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ von hochgradig ungeordnetem $Al_xGa_{1-x}In_xP$ 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 $Al_xGa_{1-x}In_xP$ 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 $Al_xGa_{1-x}In_xP$. Die erhaltenen Funktionen können für beliebiges x mit Hilfe der angegebenen Modellfunktion (MDF) und der dazu benötigten Parameter (Tab.1) produziert werden. Die E_1 - und E_2 -KP-Strukturen sind deutlich zu erkennen. Die E_1 - und E_2 -Übergänge werden mit steigendem x zu höheren Energien verschoben ($E_1: 683$ meV; $E_2: 421$ meV), während die E_3 Peaks für GaInP und AlInP im wesentlichen unanfällig sind. Die kompositionellen Abhängigkeiten der 3 KP-Energien sind

$$E_1(\text{eV}) = 1.899 + 0.683x - 0.12x(1-x) (\pm 2\%)$$

$$E_2(\text{eV}) = 3.224 + 0.421x - 0.13x(1-x) (\pm 2\%)$$

$$E_3(\text{eV}) = 4.832 + 0.02x (\pm 2\%)$$

Die angegebenen Fehler sind kleiner als 2% bei 95% Sicherheit. In Abb. 3 verglichen 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 $E < E_g$ 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_g . 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_g zu hoch.

Zusammenfassung

Es werden die dielektrische Funktion und die Parameter der kritischen Punkte von $Al_xGa_{1-x}In_xP$ 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 0.75eV bis 5.0eV 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. Francheschini and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **51**, 13097 (1995).
- F. Alesina, M. Garriga, M. I. Alonso, J. Pascual, C. Geng, P. Ernst and F. Scholz, *Cryst. 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**, 1193 (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. Kuo, 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**, 2323 (1993).
- P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors* (Springer, Berlin, 1995).
- A. D. Rakić and M. L. Majewski, *J. Appl. Phys.* **80**, 5909 (1996).
- C. C. Kim, J. W. Garland, H. Abad and P. M. Racah, *Phys. Rev. B* **45**, 1749 (1992).