

分子束外延 GaAs/Si(001)材料反相畴的湮灭机理

肖春阳¹, 王俊^{1*}, 李家琛¹, 王海静¹, 贾艳星¹, 马博杰¹, 刘倬良¹, 明蕊¹, 白一鸣²,
黄永清¹, 任晓敏¹, 罗帅³, 季海铭³

¹北京邮电大学工程学院信息光子学与光通信国家重点实验室, 北京 100876;

²华北电力大学新能源电力系统国家重点实验室, 北京 102206;

³中国科学院半导体研究所半导体材料科学重点实验室, 北京 100083

摘要 从第一性原理出发, 计算了不同温度下 GaAs 材料中沿{110}、{111}和{112}面传播的反相畴(APD)形成能, 探索了反相畴的湮灭机理。结果表明, 当温度达到 660 K 以上时, APD 最稳定的传播晶面从{110}转变到{112}。通过分子束外延(MBE)技术, 在无偏角 Si(001)衬底上生长了 1.4 μm 厚的 GaAs 外延层。测试结果表明, 随着生长温度的升高, APD 密度降低, 不同传播面的湮灭现象增加。反相畴在较高的生长温度下更易于扭折到{112}面, 从而与其他反相畴相遇并发生湮灭。该结果对全 MBE 生长高性能无偏角硅基激光器研究具有重要意义。

关键词 材料; 硅基激光器; 第一性原理; 分子束外延; 反相畴; 无偏角 Si(001)

中图分类号 O469

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.2301006

1 引言

随着互联网的蓬勃发展, 网络信息量呈指数增长, 通信向高速度、大容量方向发展^[1]。目前通信网络中的光源器件仍为分立器件, 如果能够实现光电集成, 就能减小器件体积和功耗, 极大地降低成本, 并且使网络的传输速度更快, 误码率更低^[2-3]。低成本、易集成的硅晶体是间接带隙材料, 无法作为激光光源材料, 而作为直接带隙的 III-V 族材料如 GaAs、InAs 及其三元合金 InGaAs 具有优良的电子传输性能和更高的电子迁移率^[4-5], 因此, 研究人员将 III-V 族材料直接外延生长到硅衬底上^[6-8], 结合它们各自的优势, 致力于早日实现高性能、易集成的硅基激光器^[9-11]。

符合标准互补金属氧化物半导体(CMOS)工艺要求的无偏角 Si 衬底在未经处理时, 表面呈现单层原子台阶结构, 在该衬底上外延生长 III-V 族材料会产生一种高能平面缺陷, 称为反相畴(APD)。APD 会降低器件中的少数载流子寿命, 导致器件性能下降^[12]。Zhong 等^[13]发现, 将无偏角 Si 衬底置于氢气环境下进行高温退火, 能够使 Si 表面的单层原子台阶转化为双层原子台阶。研究者基于该方式, 通过金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法, 成功在与 CMOS 工艺兼容

的无偏角 Si(001)衬底上异质外延生长了无 APD 的 III-V 族材料^[14-18]。氢气环境下的高温退火能够促使无偏角 Si(001)衬底表面的单层原子台阶转化为双层原子台阶, 在 GaAs/Si 界面处抑制 APD 的产生, 从根本上解决了 APD 的产生问题。

分子束外延(MBE)技术一般无法采用氢气作为退火环境。日本东京大学研究组基于 MBE 方法, 在无偏角 Si(001)衬底上生长了 40 nm 厚的 Al_{0.3}Ga_{0.7}As 缓冲层和 800 nm 厚的表面无 APD 缺陷的 GaAs 外延层^[19]。通过透射电子显微镜(TEM)观测到, 在与 GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 界面的距离小于 100 nm 的范围内, APD 发生湮灭并停止向上传播。2020 年, 英国伦敦大学研究组采用 MBE 技术, 在无偏角 Si(001)衬底上生长了 200 nm 厚的 Si 缓冲层, 并在真空环境下进行了高温退火, 最后生长出的 1 μm 厚的 GaAs 外延层表面无 APD 缺陷出现^[20]。经 TEM 观测, GaAs/Si 界面处产生的 APD 缺陷在传播过程中彼此相遇并发生湮灭。虽然这两种方法在工艺方面有较大的差别, 但相同的是, GaAs 材料中的 APD 有不同程度的湮灭现象出现。改变实验工艺促使 APD 湮灭成为目前 MBE 技术解决 APD 产生问题的主流方法。针对这一现象, Rubel 等^[21]基于第一性原理方法, 计算了 GaAs 材

收稿日期: 2021-12-27; 修回日期: 2022-03-01; 录用日期: 2022-03-25

基金项目: 国家自然科学基金(61874148, 61974141)、国家重点研发计划重点专项课题(2018YFB2200104)、北京市科技计划课题(Z191100004819012)、北京市自然科学基金(4212055)、国家创新研究群体科学基金(62021005)、高校学科创新引智计划项目(BP0719012)

通信作者: *wangjun12@bupt.edu.cn

料中不同传播面 APD 的形成能,并指出{113}晶面可能是湮灭备选平面之一,但未考虑温度对 APD 形成能的影响。

针对无偏角 GaAs/Si(001)材料中 APD 缺陷的问题,采用 MOCVD 技术结合氢化退火方法,可以在 GaAs/Si 界面处抑制 APD 的产生。而对于 MBE 技术,现有的实验方法均是改变实验工艺以促使 GaAs 材料中的 APD 发生湮灭,实验工艺差别较大,难以复现,且对反相畴的湮灭机理尚不清楚。因此,迫切需要从理论和实验上对 APD 扭折及湮灭现象进行研究,进一步改变实验工艺以获得无 APD 的无偏角 GaAs/Si(001)材料。

针对无偏角 GaAs/Si(001)外延材料中的 APD 扭折与湮灭现象,本文分别从理论仿真与实验方面进行了详细的探索和分析。根据 GaAs 中 APD 的不同传播晶面,分别建立了沿{110}、{111}和{112}面传播的 APD 模型。基于第一性原理获得了这三种传播面上的 APD 形成能及其随温度的变化趋势。结果表明,不同传播面的 APD 的形成能随温度的变化趋势不同,在 0~660 K 温度下,沿{110}面传播的 APD 的形成能最低,在 660~1500 K 温度下,沿{112}面传播的 APD 的形成能最低。在实验上,基于 MBE 技术,在无偏角 Si(001)衬底上采用三步法生长了 GaAs 外延层,通过改变高温层生长温度,探究了生长温度对 APD 传播特性的影响,采用原子力显微镜(AFM)和 TEM 进行了样品表面及截面的表征。结果表明,在 450~600 °C 温度范围内,生长温度越高,样品表面的 APD 密度越低,样品中的 APD 湮灭程度越高,与计算结果相符。该结果证明了真空环境下 APD 在较高温度下较易发生扭折,并在{112}晶面上传播,大大增加了与其他 APD 相遇的概率,最终在一定厚度的 GaAs 材料内发生湮灭。

2 理论模型及计算结果

本文以 GaAs 为主要研究对象,建立仿真模型为 $[110] \times [1\bar{1}0] \times [001] (X \times Y \times Z)$ 的 GaAs 超晶胞。根据 APD 传播面的不同,我们引入了 GaAs 中沿{110}、{111}和{112}面传播的 APD 模型,其示意图如图 1 所示。

对沿{110}、{111}和{112}晶面传播的 APD 进行独立建模,为了减少计算误差,建立的超晶胞模型中均保证 Ga 和 As 的原子数目相等。APD 的形成能^[21]可以描述为

$$e = \frac{E_{\text{APD}} - E_{\text{FREE}}}{S}, \quad (1)$$

式中: E_{APD} 为沿不同晶面传播的 APD 超晶胞能量; E_{FREE} 为没有 APD 存在时具有相同原子数量的超晶胞能量; S 为由反位键(Ga—Ga 键或 As—As 键)组成的二维平面面积。

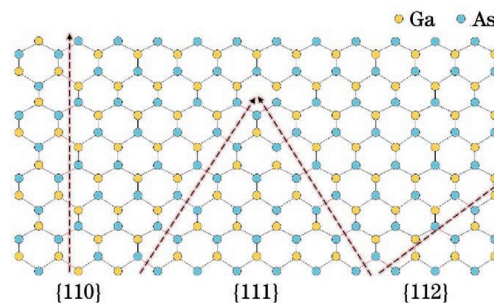


图 1 GaAs 材料中沿{110}、{111}和{112}面传播的 APD
Fig. 1 APDs propagating along {110}, {111} and {112} planes in GaAs materials

为了平衡计算精度和时间成本,我们建立的超晶胞模型大小为 $(11.99 \times 10^{-10} \text{ m}) \times (11.99 \times 10^{-10} \text{ m}) \times (9.89 \times 10^{-10} \text{ m})$ 。采用 Vienna Ab Initio Simulation Package 作为计算软件^[22-23],利用投影缀加波方法计算交换关联泛函,K 空间积分网格点取 $2 \times 2 \times 3$,截断能为 400 eV。这些参数的选择使得总能量收敛到 10^{-5} eV。

通过上述方法,在真空环境下,我们获得了 0 K 时 GaAs 中沿不同晶面传播的 APD 的形成能,分别以 $E_{\{110\}}$ 、 $E_{\{111\}}$ 和 $E_{\{112\}}$ 表示。如图 2 所示, $E_{\{110\}}$ 最低, $E_{\{111\}}$ 最高,这与 Rubel 等^[21]的计算结果一致。

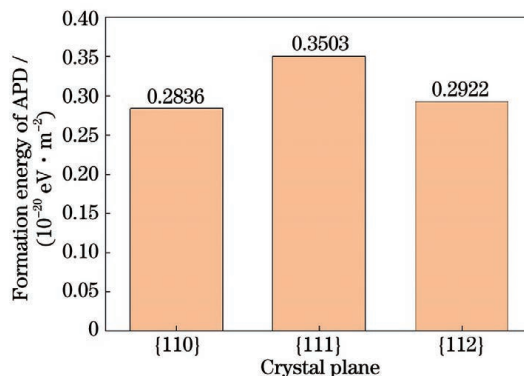


图 2 GaAs 材料中沿{110}、{111}和{112}面传播的 APD 的形成能

Fig. 2 Formation energy of APDs propagating along {110}, {111} and {112} planes in GaAs materials

实验现象表明,温度对硅基外延生长的 III-V 族材料的质量有较大的影响。通过考虑电子、声子在不同温度下对自由能的贡献,计算不同温度下的反相畴形成能。温度为 T 时的自由能 $F^{[24]}$ 应近似为

$$F(V, T) = E_0(V) + F_{\text{ph}}(V, T) + F_{\text{el}}(V, T), \quad (2)$$

式中: E_0 为通过第一性原理计算程序包(VASP)计算得到的 0 K 时的基态能量; V 为超晶胞体积; F_{ph} 为声子对自由能的贡献; F_{el} 为电子对自由能的贡献。

在 0~1500 K 温度范围内,不同传播面的 APD 的形成能随温度的变化趋势如图 3 所示。在 0~660 K 范围内, $E_{\{110\}}$ 最低, $E_{\{111\}}$ 最高。随着生长温度的升高, $E_{\{112\}}$ 会逐渐接近 $E_{\{110\}}$,在 660 K 时两者相等,随

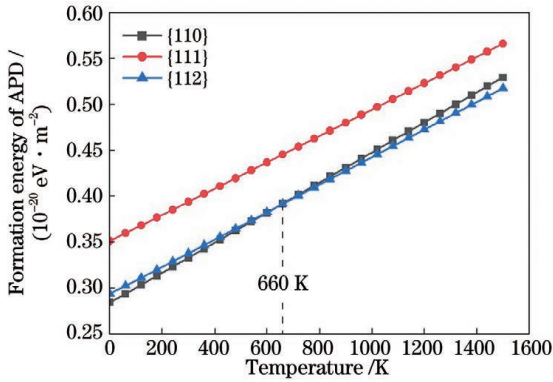


图 3 GaAs 中沿不同晶面传播的 APD 的形成能随温度的变化

Fig. 3 Formation energy of APDs propagating along different crystal planes in GaAs materials versus temperature

后 $E_{\{112\}}$ 变为最低。从热力学角度分析,提高 GaAs 外延层的生长温度,可以促使 GaAs 中沿 $\{110\}$ 面传播的 APD 扭折到 $\{112\}$ 面,从而增加与其他 APD 相遇并发生湮灭的概率。

3 实验研究及分析

根据上述仿真结论来看,生长温度对沿不同晶面传播的 APD 的形成能有重要影响,我们采用 MBE 技术生长了三个 GaAs/Si(001) 样品,探究了生长温度对 APD 传播特性的影响。衬底均采用符合 CMOS 工艺

要求的无偏角 Si(001) 衬底(偏角小于 0.5° , 偏角方向为 $\langle 110 \rangle$)。首先对 Si(001) 衬底进行 RCA 标准清洗法清洗,以去除衬底表面的有机物、金属杂质及氧化层。随后放入 MBE 系统中进行 1100°C 高温退火,进一步去除表面氧化层。接着在 300°C 温度下,沉积 5 nm 厚的 AlAs 成核层(AlAs 成核层能够有效降低外延层表面的粗糙度,提升外延材料的质量^[25])。最后采用三步法生长 GaAs 外延层,详细的生长步骤如下:首先在 300°C 温度下沉积 28 nm 厚的 GaAs 成核层;随后升温至 450°C ,生长 400 nm 厚的中温 GaAs 层;最后在 $1\text{ }\mu\text{m}$ 厚的高温 GaAs 层中在 450°C 、 500°C 、 600°C 温度下分别生长三个样品,分别标注为样品 A、样品 B 和样品 C。

在 AFM 轻敲模式下,测得的三个样品的表面形貌如图 4 所示,所测区域大小为 $10\text{ }\mu\text{m} \times 10\text{ }\mu\text{m}$,可以明显观察到各个样品表面的 APD 缺陷。对测试表面进行 APD 密度和粗糙度分析,其 APD 密度、表面粗糙度与高温 GaAs 层生长温度的关系如图 5 所示。在较低的高温层生长温度下生长的样品即样品 A,其表面 APD 密度高达 $1.54\text{ }\mu\text{m}^{-1}$ 。当生长温度提升至 600°C 时,生长的样品即样品 C 的 APD 密度为 $0.9\text{ }\mu\text{m}^{-1}$,相比样品 A 下降了约 42% 。这表明在同样的 GaAs 厚度内,APD 的湮灭率会随着温度的升高而增加。另外,同样观察到,表面粗糙度随着生长温度的升高而增大。这是由于较高的生长温度会使 GaAs

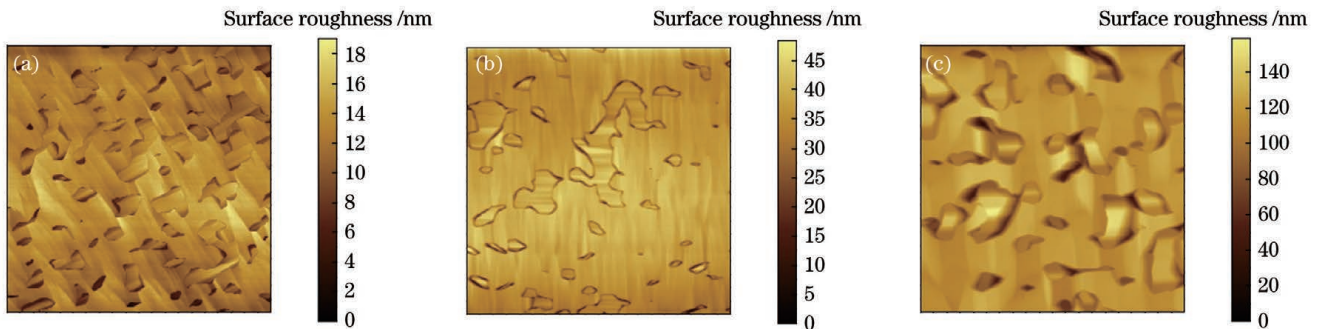


图 4 不同温度下生长的样品的 AFM 图。(a) 样品 A; (b) 样品 B; (c) 样品 C

Fig. 4 AFM images of samples grown under different temperatures. (a) Sample A; (b) sample B; (c) sample C

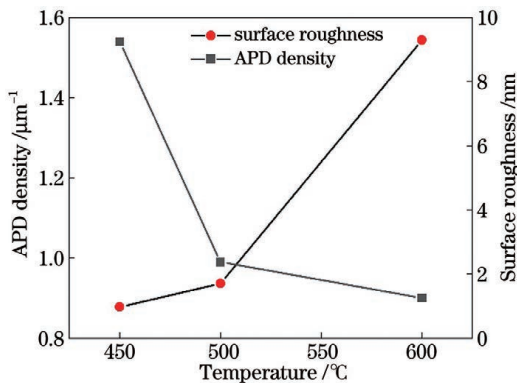


图 5 APD 密度和表面粗糙度与高温 GaAs 层生长温度的关系
Fig. 5 APD density and surface roughness versus growth temperature of high-temperature GaAs layer

呈岛状生长,因此表面粗糙度增大。在粗糙度较高的 GaAs/Si 上生长 InAs/GaAs 量子点,会使得量子点尺寸和分布不均匀,导致量子点激光器的发光性能下降。另外,在激光器制备的后工艺阶段,粗糙度较高的 GaAs 表面上的电极容易脱落。可以通过生长后退火等方法降低样品表面粗糙度。

由于样品 C 的粗糙度较高,且反相畴密度与样品 B 相差不大,考虑后续研究价值,选取样品 A 和样品 B 进行截面透射电镜测量。选择的观测区域均为高温层生长区域(与 GaAs 表面的距离小于 $1\text{ }\mu\text{m}$)。GaAs 为闪锌矿结构, g_{002} 和 $g_{0\bar{0}2}$ 衍射点对 GaAs 内的 APD 敏感,利用其中一个衍射点形成暗场像时,所成像沿 APD 两边的衍射衬度不同,即亮度不同^[26]。图 6(a)

为采用 g002 衍射点成像时样品 A 的 APD 缺陷示意图, APD 两侧的亮度明显不同, 可以看出 APD 在传播过程中会发生不同程度的曲折。

样品 A 的截面形貌如图 6(b) 所示, 可以看出, 样品 A 中有较多的 APD 缺陷(箭头所示)传播至表面。另外, 观察到反相畴首先在 $\{110\}$ 面上传播, 随后发生扭折, 传播平面与 GaAs(001) 面的夹角为 62.26° , 传播平面接近 $\{112\}$ 晶面。样品 B 的截面形貌如图 6(c)、(d) 所示, 观察到样品 B 中有较多的 APD 湮灭现象出现。对其中三处湮灭的 APD 传播晶面进行

了测定, APD 传播晶面与 GaAs(001) 面的夹角分别为 65.39° 、 65.84° 和 65.51° , 这表明三处 APD 的传播晶面均接近 $\{112\}$ 晶面。英国伦敦大学同样观察到, 在无偏角 Si(001) 衬底上生长的 GaAs 材料中, APD 首先在 $\{110\}$ 面上垂直向上传播, 随后扭折到 $\{111\}$ 、 $\{112\}$ 和 $\{113\}$ 面, 并与其他 APD 发生湮灭^[20]。本文通过测试结果发现, 较多反相畴在 $\{112\}$ 面上传播并发生湮灭, 较高的生长温度促使 APD 优先在 $\{112\}$ 面上传播, 从而增加与其他 APD 相遇并发生湮灭的概率。

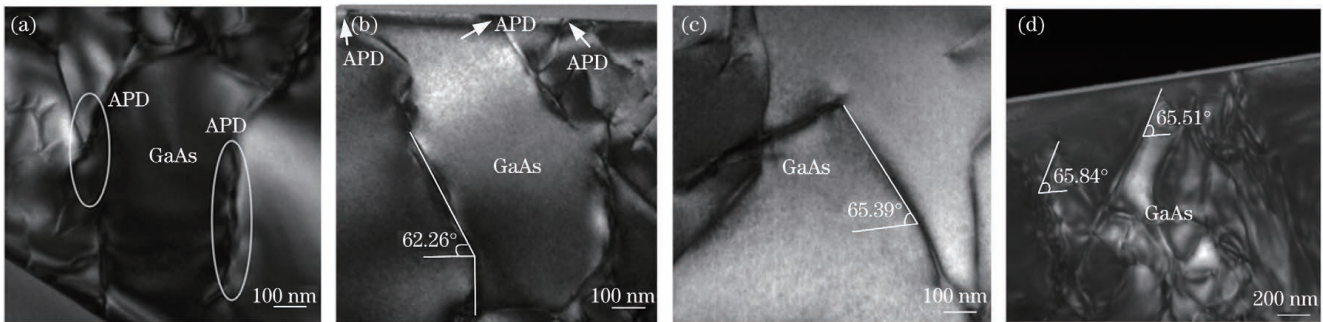


图 6 样品 A 和 B 的 TEM 图。(a) 样品 A 的 TEM 暗场像; (b) 样品 A 的截面形貌; (c) 样品 B 的 TEM 明场像; (d) 样品 B 的 TEM 暗场像

Fig. 6 TEM images of sample A and sample B. (a) TEM dark-field image of sample A; (b) cross-section morphology of sample A; (c) TEM bright-field image of sample B; (d) TEM dark-field image of sample B

4 结 论

基于第一性原理对 GaAs 中沿 $\{110\}$ 、 $\{111\}$ 和 $\{112\}$ 面传播的 APD 的形成能进行了建模计算, 同时讨论了真空环境下生长温度对 APD 形成能的影响。理论结果表明: 在 0 K 时, 沿 $\{110\}$ 面传播的 APD 的形成能最低; 在 $0 \sim 660$ K 温度范围内, 沿 $\{110\}$ 面传播的 APD 的形成能最低, 此时结构为最稳定的结构; 而在 $660 \sim 1500$ K 温度范围内, 三者中形成能最低的是沿 $\{112\}$ 面传播的 APD。实验结果表明: 当温度从 450°C 提升到 600°C 时, APD 密度下降 42%; 在生长温度为 500°C 的样品中, 有较多沿 $\{112\}$ 面传播的 APD 与其他 APD 相遇并湮灭, 这表明较高的生长温度能够促使 APD 扭折到 $\{112\}$ 面, 进而在一定厚度 GaAs 材料中发生湮灭, 与理论计算结果相符。基于第一性原理利用 MBE 技术对无偏角 GaAs/Si(001) 材料中 APD 的传播特性进行了理论分析与实验验证, 针对反相畴的湮灭现象给出了较为合理的解释。研究结果对采用 MBE 技术无偏角 Si(001) 衬底上生长高质量无 APD GaAs 材料的实验工艺探索有指导意义, 推进了全 MBE 生长高性能无偏角硅基激光器的研究。

参 考 文 献

- [1] Liang D, Bowers J E. Recent progress in lasers on silicon[J]. Nature Photonics, 2010, 4(8): 511-517.
- [2] Kachris C, Tomkos I. Power consumption evaluation of all-optical data center networks[J]. Cluster Computing, 2013, 16(3): 611-623.
- [3] Helkey R, Saleh A A M, Buckwalter J, et al. High-performance photonic integrated circuits on silicon[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2019, 25(5): 8300215.
- [4] Fang A W, Park H, Cohen O, et al. Electrically pumped hybrid AlGaInAs-silicon evanescent laser[J]. Optics Express, 2006, 14(20): 9203-9210.
- [5] 魏全香, 吴兵朋, 任正伟, 等. 双层堆垛长波长 InAs/GaAs 量子点发光性质研究[J]. 光学学报, 2012, 32(1): 0125001. Wei Q X, Wu B P, Ren Z W, et al. Photoluminescence study of two layer stacked InAs/GaAs quantum dots[J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(1): 0125001.
- [6] Liao M Y, Li W, Tang M C, et al. Selective area intermixing of III-V quantum-dot lasers grown on silicon with two wavelength lasing emissions[J]. Semiconductor Science and Technology, 2019, 34(8): 085004.
- [7] Norman J C, Jung D, Zhang Z Y, et al. A review of high-performance quantum dot lasers on silicon[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2019, 55(2): 2000511.
- [8] 王霆, 张建军, 刘慧云. 硅基 III-V 族量子点激光器的发展现状和前景[J]. 物理学报, 2015, 64(20): 204209. Wang T, Zhang J J, Liu H Y. Quantum dot lasers on silicon substrate for silicon photonic integration and their prospect[J]. Acta Physica Sinica, 2015, 64(20): 204209.
- [9] 吕尊仁, 张中恺, 王虹, 等. $1.3 \mu\text{m}$ 半导体量子点激光器的研究进展[J]. 中国激光, 2020, 47(7): 0701016. Lü Z R, Zhang Z K, Wang H, et al. Research progress on $1.3 \mu\text{m}$ semiconductor quantum-dot lasers[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(7): 0701016.
- [10] 张卓, 宁永强, 张建伟, 等. 1160 nm 光泵垂直外腔面发射激光器设计及制备[J]. 中国激光, 2020, 47(7): 0701020. Zhang Z, Ning Y Q, Zhang J W, et al. Design and fabrication of 1160-nm optically-pumped vertical-external-cavity surface-

- emitting laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47 (7): 0701020.
- [11] 宁永强, 陈泳屹, 张俊, 等. 大功率半导体激光器发展及相关技术概述[J]. 光学学报, 2021, 41(1): 0114001.
Ning Y Q, Chen Y Y, Zhang J, et al. Brief review of development and techniques for high power semiconductor lasers [J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(1): 0114001.
- [12] Liu A Y, Srinivasan S, Norman J, et al. Quantum dot lasers for silicon photonics[J]. Photonics Research, 2015, 3(5): B1-B9.
- [13] Zhong L, Hojo A, Aiba Y, et al. Atomic steps on a silicon (001) surface tilted toward an arbitrary direction[J]. Applied Physics Letters, 1996, 68(13): 1823-1825.
- [14] Németh I, Kunert B, Stolz W, et al. Heteroepitaxy of GaP on Si: correlation of morphology, anti-phase-domain structure and MOVPE growth conditions [J]. Journal of Crystal Growth, 2008, 310(7/8/9): 1595-1601.
- [15] Volz K, Beyer A, Witte W, et al. GaP-nucleation on exact Si (001) substrates for III/V device integration [J]. Journal of Crystal Growth, 2011, 315(1): 37-47.
- [16] Alcotte R, Martin M, Moeyaert J, et al. Epitaxial growth of antiphase boundary free GaAs layer on 300 mm Si (001) substrate by metalorganic chemical vapour deposition with high mobility[J]. APL Materials, 2016, 4(4): 046101.
- [17] Martin M, Caliste D, Cipro R, et al. Toward the III-V/Si co-integration by controlling the biatomic steps on hydrogenated Si(001)[J]. Applied Physics Letters, 2016, 109(25): 253103.
- [18] Chen W R, Wang J, Zhu L N, et al. Theoretical and experimental study on epitaxial growth of antiphase boundary free GaAs on hydrogenated on-axis Si(001) surfaces[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2021, 54(44): 445102.
- [19] Kwoen J, Lee J, Watanabe K, et al. Elimination of anti-phase boundaries in a GaAs layer directly-grown on an on-axis Si(001) substrate by optimizing an AlGaAs nucleation layer [J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2019, 58(SB): SBBE07.
- [20] Li K S, Yang J J, Lu Y, et al. Inversion boundary annihilation in GaAs monolithically grown on on-axis silicon (001) [J]. Advanced Optical Materials, 2020, 8(22): 2000970.
- [21] Rubel O, Baranovskii S D. Formation energies of antiphase boundaries in GaAs and GaP: an *ab Initio* study [J]. International Journal of Molecular Sciences, 2009, 10 (12): 5104-5114.
- [22] Kresse G D, Furthmüller J. Efficiency of *ab-initio* total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set[J]. Computational Materials Science, 1996, 6(1): 15-50.
- [23] Kresse G D, Furthmüller J. Efficient iterative schemes for *ab initio* total-energy calculations using a plane-wave basis set[J]. Physical Review. B, Condensed Matter, 1996, 54 (16): 11169-11186.
- [24] Shang S L, Wang Y, Liu Z K. First-principles calculations of phonon and thermodynamic properties in the boron-alkaline earth metal binary systems: B-Ca, B-Sr, and B-Ba[J]. Physical Review B, 2007, 75(2): 024302.
- [25] Chen S M, Li W, Wu J, et al. Electrically pumped continuous-wave III-V quantum dot lasers on silicon[J]. Nature Photonics, 2016, 10(5): 307-311.
- [26] Caleb S C B. Investigation of antiphase boundary energetics in GaAs-on-Si(001)[D]. Gainesville: University of Florida, 2017: 94-97.

Annihilation Mechanism of Antiphase Domains in GaAs/Si(001) Materials Grown by Molecular Beam Epitaxy

Xiao Chunyang¹, Wang Jun^{1*}, Li Jiachen¹, Wang Haijing¹, Jia Yanxing¹, Ma Bojie¹, Liu Zhuoliang¹, Ming Rui¹, Bai Yiming², Huang Yongqing¹, Ren Xiaomin¹, Luo Shuai³, Ji Haiming³

¹ State Key Laboratory of Information Photonics and Optical Communications, School of Electronic Engineering, Beijing University of Posts and Telecommunications, Beijing 100876, China;

² State Key Laboratory of New Energy Power System, North China Electric Power University, Beijing 102206, China;

³ Key Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China

Abstract

Objective An unprocessed, on-axis Si substrate has a single-layer atomic step structure on its surface. The epitaxial growth of III-V materials on substrates results in the high-energy planar defect called antiphase domain (APD). The APD reduces the minority carrier lifetime in devices, degrading the performance of devices. Placing an on-axis Si substrate in the hydrogen environment for high-temperature annealing can promote the transformation of single-layer atomic steps into double-layer atomic steps and suppress APD generation at the GaAs/Si interface. However, the molecular beam epitaxy (MBE) technology cannot take hydrogen as annealing environment. Existing experimental methods involve changing the experimental process, which is unique and difficult to reproduce, to promote the annihilation of APD in GaAs materials. However, the APD annihilation mechanism remains unclear. In this study, the formation energy of APD propagating along the {110}, {111}, and {112} planes in GaAs materials at different temperatures is calculated using the first principle to explore the APD annihilation mechanism. The most stable propagating plane of the APD changes from {110} to {112} when the temperature exceeds 660 K. A 1.4- μm thick GaAs epitaxial layer is grown on an on-axis Si (001) substrate using the MBE technology. The results demonstrate that the APD density on the GaAs surface decreases and the annihilation probability of the APD increases with an increase in the growth temperature. At

high growth temperatures, the APD can easily be twisted to the $\{112\}$ plane and annihilate.

Methods Aiming at the phenomenon of APD kink and annihilation in on-axis GaAs/Si(001) epitaxial materials, this paper presents the detailed exploration and analysis of theoretical simulations and experiments, respectively. According to the different propagation planes of the APD in GaAs, APD models propagating along the $\{110\}$, $\{111\}$, and $\{112\}$ planes are established. The APD formation energy on these three propagation surfaces and their variation trends with temperature are obtained using the first principle. Experimentally, GaAs epitaxial layer is grown on an on-axis Si (001) substrate based on the MBE technology using a three-step method. Atomic force microscopy (AFM) and transmission electron microscopy (TEM) are used to characterize the surfaces and cross sections of the samples.

Results and Discussions The APD formation energy on different propagation planes varies with temperatures. At 0–660 K, the APD formation energy on the $\{110\}$ propagation plane is the lowest, and at 660–1500 K, the APD formation energy on the $\{112\}$ propagation plane is the lowest (Fig. 3). In the range of 450–600 °C, the higher the growth temperature, the lower the APD density (Fig. 5) and the higher the APD annihilation degree in the sample (Fig. 6), which is consistent with the calculated results.

Conclusions In this study, the formation energy of APDs propagating along the $\{110\}$, $\{111\}$, and $\{112\}$ planes in GaAs is calculated based on the first principle, and the effect of growth temperature on the APD formation energy in vacuum environment is determined. The theoretical results demonstrate that, at 0 K, the formation energy of the APD propagating along the $\{110\}$ plane is the lowest; in the temperature range of 0–660 K, the formation energy of the APD propagating along the $\{110\}$ plane is the lowest; and in the temperature range of 660–1500 K, the APD propagating along the $\{112\}$ plane has the lowest formation energy. The experimental results demonstrate that when the temperature increases from 450 °C to 600 °C, the APD density decreases by 42%, and in the sample with a growth temperature of 500 °C, more APDs along the $\{112\}$ plane are found to meet other APDs and annihilate. A higher growth temperature promotes the kink of the APD to the $\{112\}$ plane and then the APD annihilates in the GaAs material with a certain thickness, which is consistent with the theoretical calculation results. In this study, based on the first principle and MBE technology, the propagation characteristics of APD in on-axis GaAs/Si (001) materials are theoretically analyzed and experimentally verified. The results have a guiding significance for the experimental process exploration of growing high quality APD-free GaAs materials on on-axis Si (001) substrates by MBE technology and promote the research on high-performance on-axis silicon-based lasers by MBE technology.

Key words materials; lasers on silicon; first principle; molecular beam epitaxy; antiphase domain; on-axis Si(001)