

# GaAs 晶体在不同应变下生长过程的分子动力学模拟\*

袁用开<sup>1)</sup> 陈茜<sup>1)†</sup> 高廷红<sup>1)</sup> 梁永超<sup>1)</sup>  
谢泉<sup>1)</sup> 田泽安<sup>1)2)</sup> 郑权<sup>1)</sup> 陆飞<sup>1)</sup>

1) (贵州大学大数据与信息工程学院, 新型光电子材料与技术研究所, 省部共建公共大数据国家重点实验室, 贵阳 550025)

2) (湖南大学信息科学与工程学院, 长沙 410082)

(2022 年 9 月 23 日收到; 2023 年 5 月 17 日收到修改稿)

GaAs 晶体的高质量生长对于制造高性能高频微波电子器件和发光器件具有重要意义. 本文通过分子动力学方法对 GaAs 晶体沿 [110] 晶向的诱导结晶进行模拟, 并采用最大标准团簇分析、双体分布函数和可视化等方法研究应变对生长过程和缺陷形成的影响. 结果表明, 不同应变条件下 GaAs 晶体的结晶过程发生显著变化. 在初始阶段, 施加一定拉应变和较大的压应变后, 体系的晶体生长速率发生降低, 且应变越大, 结晶速率越低. 此外, 随着晶体的生长, 体系形成以 {111} 小平面为边界的锯齿形界面, 生长平面与 {111} 小平面之间的夹角影响固液界面的形态, 进而影响孪晶的形成. 施加拉应变越大, 此夹角越小, 形成孪晶缺陷越多, 结构越不规则. 同时, 体系中极大部分的位错与孪晶存在伴生关系, 应变的施加可以抑制或促进位错的形核, 合适的应变甚至可以使晶体无位错生长. 本文从原子尺度上研究 GaAs 的微观结构演化, 可为晶体生长理论提供理论指导.

**关键词:** 分子动力学模拟, GaAs, 诱导结晶, 应变

**PACS:** 68.08.De, 64.70.kg, 81.10.Aj, 81.10.Fq

**DOI:** 10.7498/aps.72.20221860

## 1 引言

砷化镓 (GaAs) 是一种十分重要的 III-V 族化合物半导体材料, 在微电子和光电子领域应用广泛, 具有极大的生产价值<sup>[1,2]</sup>. 利用 GaAs 的直接带隙跃迁及高光电转化效率特性<sup>[3]</sup>, 制造的发光二极管、激光器、太阳能电池等光电子器件在发光显示、智能手机、航空航天等领域都有广泛的应用<sup>[4–8]</sup>. 在微电子器件方面, 因其具有宽禁带宽度 (1.43 eV)、高电子迁移率 (是 Si 的 5—6 倍) 和低消耗功率等

特性, 而被广泛应用于移动通信、光纤通信、超高速计算机、全球定位和军工电子等诸多领域<sup>[9–13]</sup>.

虽然 GaAs 具有优越的性能, 但由于 As 元素具有较强的挥发性使得 GaAs 在高温下容易分解<sup>[14]</sup>, 这一特殊的性质导致生产理想的高纯单晶材料需要较高的技术要求. 微观结构决定材料的特性, 实验上难以对 GaAs 晶体生长过程中的微观结构演变进行研究, 且需要耗费大量的成本及时间. 随着计算机技术的发展, 通过分子动力学 (MD) 模拟分析材料的微观结构是一种很好的方法<sup>[15,16]</sup>. MD 模拟能够再现晶体生长过程, 并在原子尺度上描述材

\* 贵州省基础研究计划 (自然科学类)(批准号: ZK[2022]042, ZK[2021]051, [2017]5788)、国家自然科学基金 (批准号: 51761004, 51661005, 11964005)、贵州大学智能制造产教融合创新平台及研究生联合培养基地 (批准号: 2020-520000-83-01-324061) 和贵州大学培育项目 (批准号: [2020]33) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [chenzhangqianer@163.com](mailto:chenzhangqianer@163.com)

料微观结构和缺陷形成机制,进而为晶体生长技术带来发展和革新.近年来,许多学者通过 MD 模拟对有关 GaAs 的结构特征及加工进行了大量研究. Jia 等<sup>[17]</sup>利用 MD 模拟研究 GaAs 纳米线在重离子照射下的辐照效应和力学响应变化,发现纳米线的主要损伤机制是溅射,表面效应的存在使得纳米线缺陷的数量比体结构大. Thu 和 Hoang<sup>[18]</sup>模拟了液态 GaAs 中 Ga 和 As 离子的扩散,发现扩散常数的温度依赖性在高于熔点的相对低温下显示出 Arrhenius 定律,在较高温度下显示为幂法则. Luo 等<sup>[19]</sup>通过 MD 模拟研究了液体 GaAs 在不同冷却速率下快速凝固过程中 As 的偏析现象,发现 As 的偏析区域是简单的立方体结构,并受到冷却速度的显著影响.然而,无论是通过实验还是模拟,都很难生产出具有完美晶体结构的 GaAs 晶体.随着器件向更大功率、更高集成度的发展,对 GaAs 单晶衬底的均匀性、微区均匀性提出了更高的要求.

在 GaAs 诱导结晶的实际生产过程中,会产生各种应力或应变,如晶体内存在的非线性温度梯度而导致的热应力、固液相变引发的相变应力、晶格畸变产生的应力等<sup>[20–22]</sup>.晶体内应力较高时便会产生位错等晶体缺陷,位错的存在会严重影响 GaAs 基器件的性能、寿命和可靠性<sup>[23,24]</sup>.探索应力或应变对 GaAs 晶体生长过程和结构缺陷形成的影响对于提高晶体质量和生长效率、降低生产成本具有重要意义.本文采用分子动力学方法模拟 GaAs 晶体在不同应变条件下的诱导结晶过程,分析晶体生长中微观结构及缺陷的演变,为提高材料的工业性能提供理论依据.

## 2 模拟条件和方法

通过大规模原子/分子并行模拟器 (large-scale atomic/molecular massively parallel simulator, LAMMPS)<sup>[25,26]</sup> 开源软件在包含 65536 个原子 (32768 个 Ga 原子和 32768 个 As 原子) 的立方体盒子中进行 MD 模拟.图 1 为 GaAs 晶体生长的初始固液模型,由左侧规则排列的籽晶和右侧无序排列的熔体组成.籽晶沿  $X$ ,  $Y$  和  $Z$  轴的取向分别为  $[110]$ ,  $[\bar{1}10]$  和  $[001]$  方向,熔体段通过在籽晶右侧熔化 GaAs 晶体的过程中获得.将生长方向设置为坐标系的  $X$  轴 (晶体的  $[110]$  方向),沿  $[001]$  方向 ( $Z$  轴) 施加单轴法向应力,在此方向上施加 -2%,

-4%, -6% 的压应变和 2%, 4%, 6% 的拉应变.同时将籽晶的中间部分  $X$  方向两个周期中的原子 (图 1 红色虚线范围内) 的坐标固定,以防体系应力在模拟过程中发生松弛.

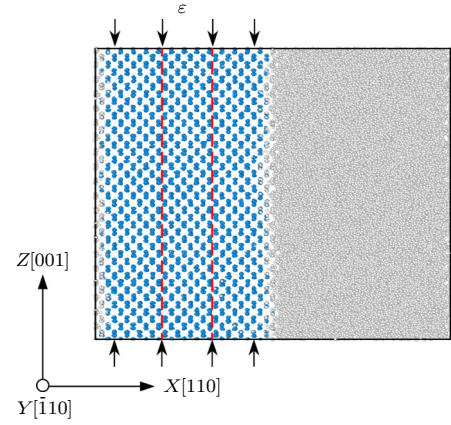


图 1 MD 模拟中 GaAs 晶体的固液模型. 蓝色原子代表晶体原子, 灰色原子代表熔体原子

Fig. 1. Solid-liquid model of GaAs crystal in the MD simulation. The blue atoms represent the crystal atoms and the grey atoms represent the melting atoms.

本文模拟的势函数为 Albe 等<sup>[27]</sup>于 2002 年提出的 Tersoff 势,其具体的函数模型为

$$E = \sum_{i>j} f_{ij}(r_{ij}) \left[ V_{ij}^R(r_{ij}) - V_{ij}^A(r_{ij}) \frac{B_{ij} + B_{ji}}{2} \right], \quad (1)$$

$$V^R(r) = \frac{D_0}{S-1} \exp \left[ -\beta \sqrt{2S} (r - r_0) \right], \quad (2)$$

$$V^A(r) = \frac{SD_0}{S-1} \exp \left[ -\beta \sqrt{2S} (r - r_0) \right], \quad (3)$$

$$f(r) = \begin{cases} 1, & r < R-D, \\ \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \sin \left[ \frac{\pi (r-R)}{2D} \right], & R-D < r < R+D, \\ 0, & r > R+D, \end{cases} \quad (4)$$

$$B_{ij} = (1 + \chi_{ij})^{-1/2}. \quad (5)$$

这里,  $E$  为总势能;  $f(r)$  为截断函数;  $B_{ij}$  为原子对  $i$  和  $j$  之间的键序参数;  $V_{ij}^R(r_{ij})$  和  $V_{ij}^A(r_{ij})$  分别为原子之间的吸引势和排斥势,由键能  $D_0$ , 键长  $r$  和可调参数  $S$  决定; 参数  $\beta$  可由二聚体的基态振荡频率确定;  $R$  为截断参数;  $\chi_{ij}$  为有效配位数. 参照实验数据和理论计算<sup>[28,29]</sup>, 模拟中势模型的相互作用参数在表 1 列出 ( $1 \text{ \AA} = 10^{-10} \text{ m}$ ). 模拟采用三维周期边界条件, 时间步长设置为  $10^{-3} \text{ ps}$ , 每间隔  $10 \text{ ps}$  记录一次体系中原子坐标与能量等相关物理

信息. 通过 Nose-Hoover 热浴法的控制<sup>[30]</sup>, 体系在等温等压 (NPT) 系综环境中运行 20 ns. 最后采用最大标准团簇分析法 (LaSCA)<sup>[31]</sup>、双体分布函数 (PDF)<sup>[32]</sup> 和可视化等方法研究 GaAs 晶体诱导结晶过程中的微观结构演变.

表 1 GaAs 中各原子间的相互作用参数<sup>[28,29]</sup>

Table 1. Interaction parameters between the atoms in GaAs<sup>[28,29]</sup>.

| 参数                       | Ga—Ga    | As—As   | Ga—As  |
|--------------------------|----------|---------|--------|
| $\gamma$                 | 0.007874 | 0.455   | 0.0166 |
| $S$                      | 1.11     | 1.86    | 1.1417 |
| $d$                      | 0.75     | 0.1612  | 0.56   |
| $\beta/\text{\AA}^{-1}$  | 1.08     | 1.435   | 1.5228 |
| $D_0/\text{eV}$          | 1.40     | 3.96    | 2.10   |
| $R_0/\text{\AA}$         | 2.3235   | 2.10    | 2.35   |
| $c$                      | 1.918    | 0.1186  | 1.29   |
| $h = \cos\theta_0$       | 0.3013   | 0.07748 | 0.237  |
| $\alpha/\text{\AA}^{-1}$ | 1.846    | 3.161   | 0      |
| $R_c/\text{\AA}$         | 2.95     | 3.40    | 3.10   |
| $D/\text{\AA}$           | 0.15     | 0.20    | 0.20   |

### 3 结果与分析

#### 3.1 最大标准团簇构型熵

最大标准团簇分析法 (LaSCA)<sup>[33–35]</sup> 以欧几里得距离为基础, 使用拓扑判据可以在没有任何预设参数的情况下, 搜索并确定每个原子周围的唯一截断距离  $R_c$ , 客观地描述每个原子及其近邻原子组成的局部结构. LaSCA 确定的基本结构单元称为最大标准团簇 (LaSC), 由一个中心原子及其近邻组成, 每个原子都可以与中心原子形成一个参考对 (RP). 图 2(a) 为体系中主要含有的 [4-S000] LaSC, 其配位数为 4, 包含 4 个不成键的近邻原子, 意味着有 4 个 S000 共有近邻子团簇. [4-S000] LaSC 结构的存在使得体系具有较高的致密度. 在闪锌矿和纤锌矿晶体结构中, [4-S000] LaSC 表示有序结构的基本组成单元. 为了更好地描述体系结构的有序度变化, 可采用 LaSC 构型熵来分析结晶过程中局域拓扑结构的类型和概率分布<sup>[36,37]</sup>. 基于熵的本质概念, 构型熵被定义为

$$S = - \sum (\rho_i \log \rho_i), \quad (6)$$

其中  $\rho_i$  是第  $i$  类局部结构占系统的比例. 体系的结构种类越多,  $\rho_i$  就越小,  $S$  值越大, 体系越混乱. 对

于晶体结构而言, 晶体的完美度越高, 即晶体缺陷越少, 体系越稳定, 则构型熵值越低, 并且晶体的构型熵值通常非常低. 基于最大标准团簇分析的 LaSC 构型熵可以建立局部结构种类和体系有序度的关系. 图 2(b) 给出了以 LaSC 为结构单元, 在不同应变下计算得到构型熵在定向凝固过程中的变化. 在最初的 2 ns 时间内, 构型熵值大幅度下降, 表明体系的混沌程度大大降低, 形成了许多相对有序的结构. 可以看出, 曲线大致可分成 3 组, 应变绝对值相同的体系具有相同变化趋势的构型熵曲线, 且应变绝对值越大, 构型熵值越高, 这表明体系结构中晶体完美度越低. 应变  $\varepsilon$  为 +0.02 和 -0.02 时, 构型熵的曲线变化趋势与无应变时一致, 说明低应变对结晶趋势的影响很小. 在应变较高的诱导结晶过程中, 体系形成的晶体团簇数量相对较少, LaSC 的种类数量较多, 因此体系所形成的更加无序的局部结构提高了体系的构型熵.

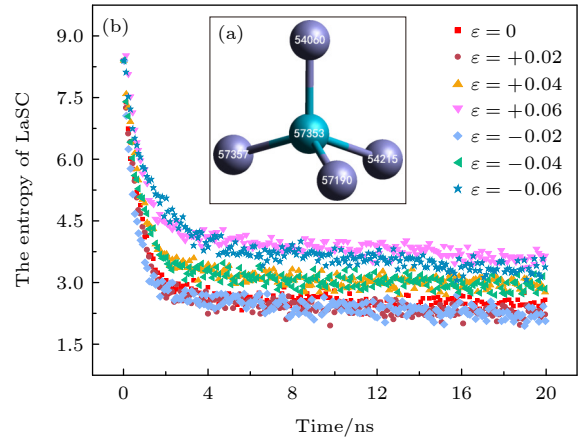


图 2 (a) [4-S000] LaSC 示意图; (b) 7 种应变下体系的 LaSC 构型熵变化

Fig. 2. (a) Diagram of [4-S000] LaSC; (b) LaSC entropy changes for the systems at seven strains.

#### 3.2 双体分布函数

双体分布函数 (PDF 或  $g(r)$ ) 因其客观性和可靠性被广泛用于表征体系中原子的整体空间分布和结构特征, 与 X 射线衍射实验中所获得的结构因子互为 Fourier 变换, 可以很好地与实验结果相对照<sup>[38]</sup>. 图 3 为施加不同应变条件时, 熔体原子在不同时刻的 PDF 曲线. 从图 3 可以发现, 在初始时刻, 7 组曲线具有典型的液体特征, 只有两个明显的峰, 且波峰和波谷较宽. 随着弛豫时间的延长, PDF 曲线第一峰逐渐变高变锐, 系统第一近邻 Ga—As 键成



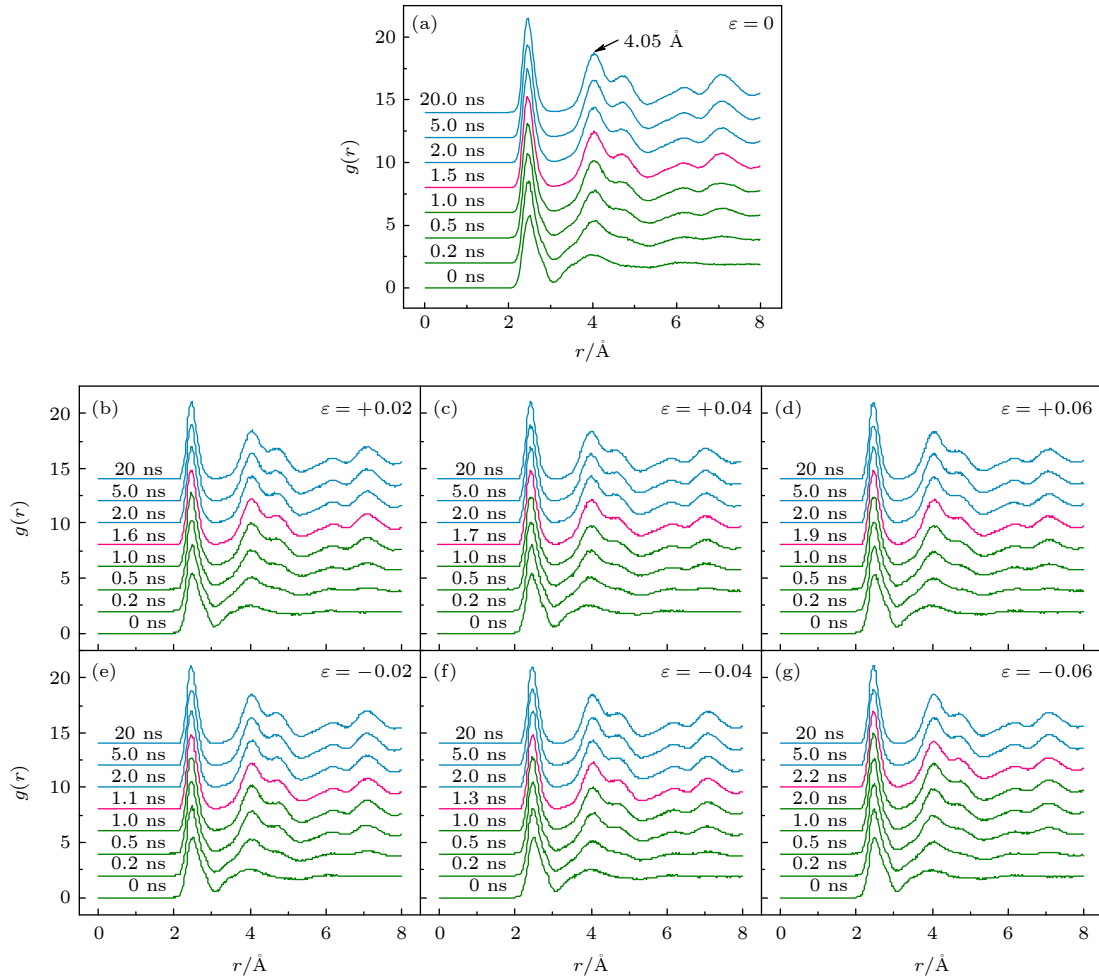


图3 不同应变下熔体区域的PDF曲线

Fig. 3. PDF curves of the melt region at different strains.

键的概率逐渐增大, 表明系统短程有序度逐渐提高. 0—0.2 ns 时间内第1峰右肩处对应于 Ga—Ga 键的小肩峰快速消失, 说明初始阶段大量原子重新结合引起了系统的结构变化. 当时间到达 0.5 ns 时, 第2峰开始分裂, 而后逐渐变成两个子峰, 其中左子峰的高度大于右子峰. 左子峰位于 4.05 Å, 对应 Ga—Ga 或 As—As 键的键长. 右子峰表示的原子之间的距离大于最近邻, 因此在系统中形成了一些中程有序结构. 此外, PDF 曲线上出现了一些新的峰, 体系的晶体特征变得明显. 应变为 0 时 (图 3(a)), 曲线各峰在 1.9 ns 基本成型 (红色), 峰值形状与之后的曲线相似. 对比施加应变后 (图 3(b)—(g)) 与未施加应变时的 PDF 曲线可以发现, 应变为 -0.02 和 -0.04 时的曲线各峰成型时间相对提前, 而其他应变条件下时间都有所推迟, 尤其在应变为 -0.06 条件下推迟至 2.2 ns. 不同应变的施加对熔体原子的结晶过程产生了不同的影响.

### 3.3 晶体生长速率

晶体生长速率反映了物质从液相转变为晶相的速率, 能够体现出 GaAs 诱导式结晶过程中应变对熔体原子晶化速度快慢的影响. 同时, Voronoi 多面体可以准确描述半导体材料的液态、晶态和非晶态结构中原子周围的局部结构 [39,40], 其采用垂直平分面方法对目标原子及其邻近原子进行分割, 以构建体积最小化闭合多面体结构. 通过 Voronoi 多面体指数法能够有效追踪体系的结构变化. 在闪锌矿和纤锌矿晶体结构中, 由 4 个三角形组成的四面体结构  $\langle 4000 \rangle$  代表其有序结构单元. 因此, 可以采用  $\langle 4000 \rangle$  晶体团簇的数量变化来计算晶体生长速率. 图 4 为每隔 0.1 ns 计算一次体系中晶体团簇数量相比上一时刻的数量差值得到的结晶速率分布图. 在最初的 1 ns 内晶体生长速率急剧下降, 表明体系在较短的时间内完成了晶化. 随着时间的延长, 结晶速率逐渐减慢. 这是因为晶体区域和液

体区域之间存在结构差异, 施加一定过冷度时, 液相的自由能高于固相的自由能, 在初始阶段结晶潜热容易释放, 晶体生长的驱动力更强.

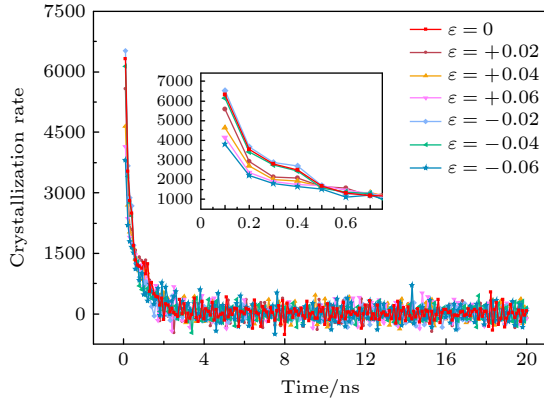


图4 施加不同应变时结晶速率随时间的变化, 插图显示0—0.7 ns 时间内的放大部分

Fig. 4. Variation of crystallization rates with time under different strains, and the inset shows the enlarged portion for the time range of 0 to 0.7 ns.

不同应变下速率曲线的变化趋势大致相同, 图4插图显示前0.7 ns 变化最明显的阶段. 可以看到与应变为0 (红色) 时相比, 除-0.02 和-0.04 压应变外, 其他应变条件下初始晶体生长速率均有所降低, 应变为-0.06 时结晶速率最慢. 这与图3 PDF 曲线中各峰成型时间相对应. 当籽晶部分施加应变时, 固相部分的应变能增加, 固液相的自由能差减小, 从而 GaAs 晶体的生长速率变慢. 且应变越大, 结晶速率相对越低. 但在施加压应变情况下, 当应变较小, 对于相变驱动力并未产生较大影响, 生长速率相对于无应变时不变或稍有提高; 当压应变增大到-0.06 时, 压应变会显著降低晶体生长驱动力, 生长速率又会减小.

### 3.4 孪晶缺陷及位错密度

为研究不同应变下体系的状态变化, 图5(a) 为7种体系中孪晶缺陷原子数随时间的变化曲线. 采用位错分析算法 (DXA)<sup>[41]</sup> 可表征分子模拟过程中的位错拓扑结构, 并有效分析位错、层错、孪晶和晶界的演化以及晶体缺陷的反应. 从图5 可以看出, 施加拉应变时, 孪晶缺陷原子数目随着应变量的增大而明显增加. 而施加压应变时, 仅在应变为-0.06 时, 孪晶形核、长大的驱动力显著增大, 孪晶数量大量增加. 作为晶内缺陷孪晶的出现, 表明系统局部具有较高应力.

位错是 GaAs 晶体中存在的键缺陷, 不同应变下体系内位错密度随时间的变化情况, 如图5(b) 所示. 位错密度定义为单位体积晶体中所含的位错线的总长度, GaAs 中诱发位错的主要因素有应力、晶界和过冷度等. 从图5(b) 可以看出, 在定向凝固初始阶段, 位错密度急剧上升, 这是由于此时晶体结构初步形成, 局部分布的晶体结构不稳定, 在其周围出现大量的晶体缺陷, 导致体系的位错迅速增殖. 位错的形成使得体系的应力得到释放. 随着等温弛豫的继续, 不同应变体系中位错密度均出现突然降低的过程, 这是由于体系内位错滑移以及位错反应, 内部微观结构发生改变. 同时, 在晶体生长过程中, 系统总是自发地由高能量状态转变到低能量状态, 位错的消除将提高系统的局部结构稳定性. 对比分析不同应变情况可以发现, 与应变为0 时相比, 施加应变以后, 晶体生长过程中位错密度会发生很大变化. 应变为+0.02, -0.02, -0.04 时, 位错密度显著降低. 在较小的应变下, 体系的位错密度更低, 说明体系的晶体缺陷相对较少, 有助于

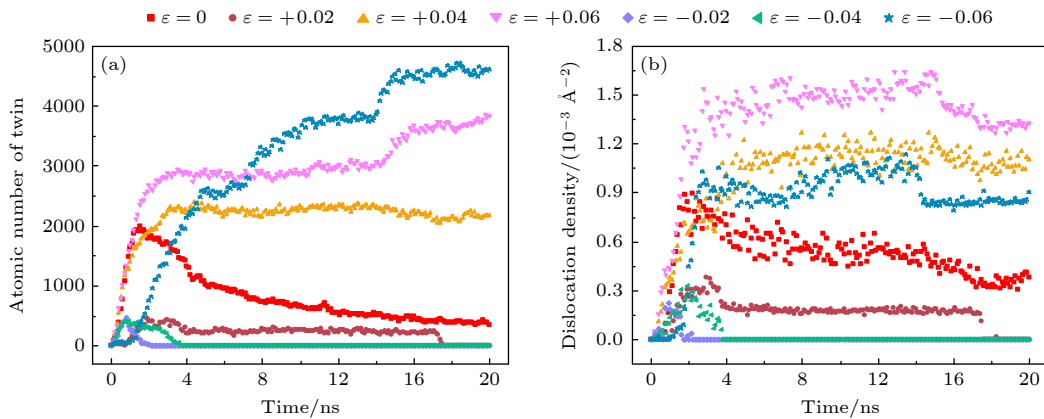


图5 孪晶缺陷原子数 (a) 和位错密度 (b) 随时间的变化曲线

Fig. 5. Variation of the number of twin defect atoms (a) and dislocation density with time (b).



形成的晶体更加标准<sup>[42]</sup>. 特别是在-0.02 应变下几乎没有位错形核, 可以使晶体无位错生长. 但是当应变继续增大以后, 位错形核还是会增多. 位错密度的变化趋势和纤锌矿结构原子有一定联系, 在[110] 晶向定向凝固过程中, 纤锌矿结构原子通常会形成孪晶. 与图 5(a) 对比可以看出, 位错密度与孪晶缺陷原子数具有相似的变化趋势, 这表明体系中极大部分的位错和孪晶存在着一种伴生关系.

### 3.5 结晶演化过程

为更加直观地表征 GaAs 体系在定向凝固过

程中的固液界面及缺陷的分布情况, 采用可视化工具 (OVITO)<sup>[43]</sup> 对体系的结晶过程进行深入分析. 图 6 为 7 种应变下体系的微观结构演变过程, 不同颜色被用来标记不同的原子结构. 蓝色原子代表正常的闪锌矿晶体原子, 白色原子代表熔体无序原子, 而黄色原子则是纤锌矿原子. 从图 6 可以看到, 固液界面形态从最初的平面形状演变为锯齿形状. 晶体原子通过捕获液相区随机扩散的原子, 诱导游离原子结晶. 固液界面的移动可以从宏观上表现出体系原子从液态转变为晶态的结晶过程. 不同应变条件下固液界面的形状及速度的变化是不同的. 相

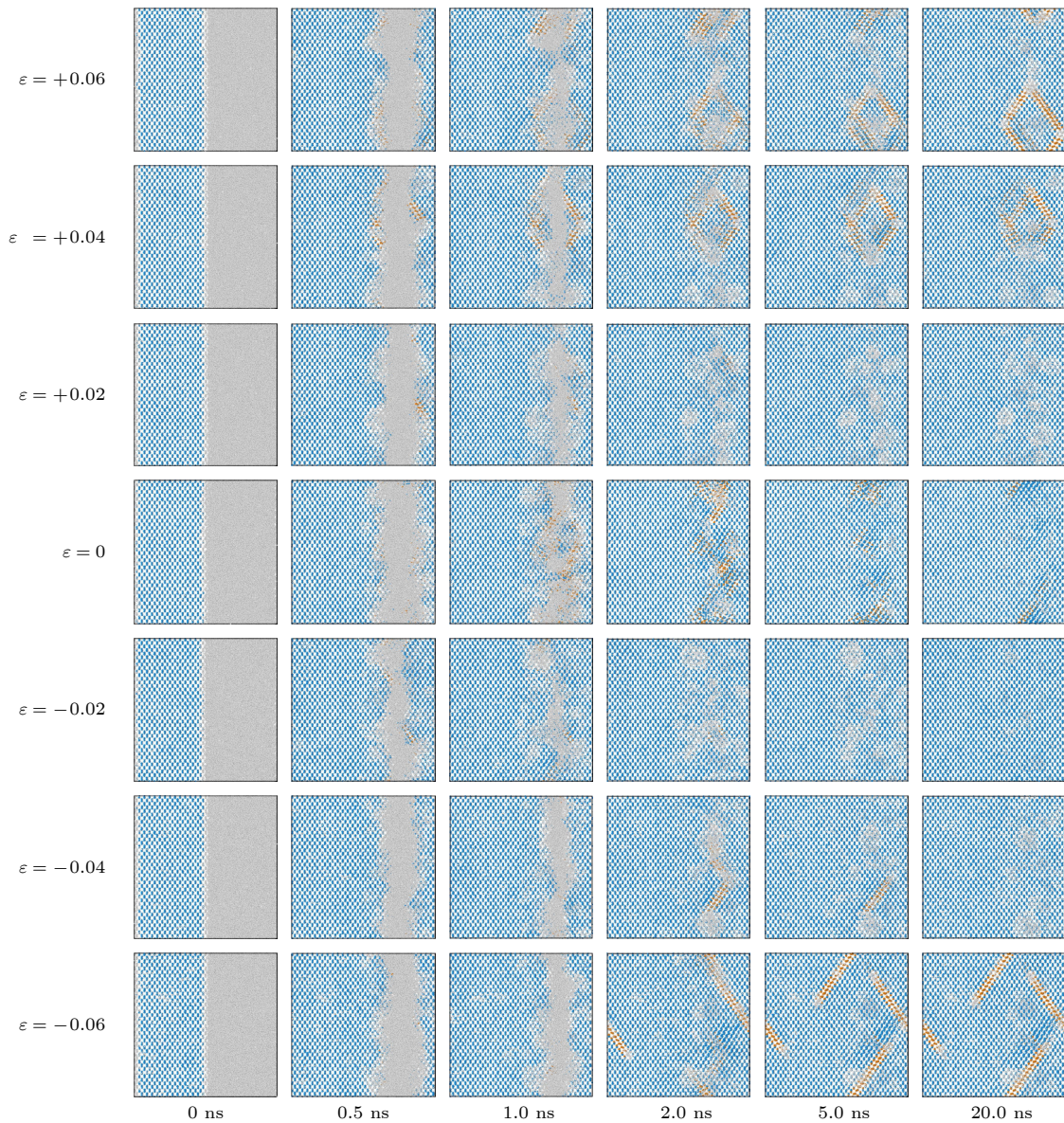


图 6 不同应变下 GaAs 诱导式结晶体系的微观结构演变过程 (蓝色原子代表闪锌矿结构原子; 黄色原子代表纤锌矿结构原子; 白色原子代表其他类型的无序原子)

Fig. 6. Microstructural evolution of GaAs-induced crystallization systems at different strains (Blue atoms represent zinc-blende structure atoms; yellow atoms represent wurtzite structure atoms; white atoms are other types of disordered atoms).



比于未施加应变, 压应变或拉应变越大, 固液界面的移动速度越慢, 与结晶速率相对应. 同时, 在最终 20 ns 时, 不同应变下体系的结晶状况呈现较大差异. 应变为 0 时, 体系中出现一些纤锌矿原子及其近邻原子, 系统总体顺序不规则, 晶体质量并不理想. 当施加较小应变时, 体系具有极少的纤锌矿孪生原子, 结晶效果相对较好, 晶体质量高于无应变条件下. 而当应变较大时, 在体系中形成了许多纤锌矿原子层, 并且在层中堆叠了许多缺陷. 可以清楚观察到在 -0.06 压应变条件下, 纤锌矿结构原子 (黄色) 扩展至左侧籽晶区域, 晶体生长的质量并不理想.

比较诱导结晶的差异, 可以发现压应变为 -0.02 时诱导晶体的质量最好. 键角分布函数 (ADF)<sup>[44]</sup> 可以计算相邻原子形成角的统计平均值, 进而有效描述系统的局域结构. 图 7 显示了此应变条件下不同时刻的 ADF 曲线, 以说明键角的变化趋势. GaAs 晶体中 Ga 和 As 形成的化学键呈正四面体构型, 理想键角为  $109^{\circ}28'$ . 在 0 ns 时, 角度分布很宽, 结晶尚未开始; 随着弛豫时间的延长, 曲线中主峰逐渐向  $109^{\circ}28'$  处集中并变高变锐, 这表明体系结晶形成四面体结构, 结晶程度明显提高.

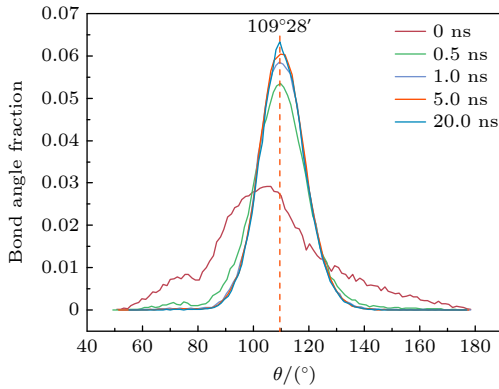


图 7  $\varepsilon = -0.02$  时的 ADF 曲线  
Fig. 7. ADF curves at  $\varepsilon = -0.02$ .

施加拉应变时, 体系中形成的孪生原子与应变存在关联, 这种关系可能与  $\{111\}$  小平面密切相关. 图 8(a) 显示了等温弛豫一段时间后系统的原子结构. 随着晶体的生长, 体系形成以  $\{111\}$  小平面的锯齿形界面, 孪晶出现在该界面上. 孪晶界面与初始晶体生长面之间会形成一个夹角  $\alpha$ , 应变为 0 时,  $\alpha$  约为  $35.3^{\circ}$ . 两个连续的孪晶界组成本征堆垛层错, 绿色所示的位错位于本征堆垛层错结构的末端, 沿  $[\bar{1}10]$  方向线状分布. 该位错的

Burgers 矢量为  $1/6\langle 112 \rangle$ , 为 GaAs 晶体中典型的  $30^{\circ}$  肖克利不全位错, 其形成可以降低体系的应变能, 从而恢复晶体生长速度. 图 8(b) 为  $\{111\}$  小平面与生长平面之间的几何关系示意图, 红色原子表示生长平面中的原子, 蓝色原子是可能形成的  $\{111\}$  小平面中的原子. 施加应变会改变生长面和  $\{111\}$  小平面之间的角度  $\alpha$ , 拉应变越大  $\alpha$  值越小, 形成孪晶越多, 也越不规则. 这意味着  $\{111\}$  小平面在角度较小时更容易出现.

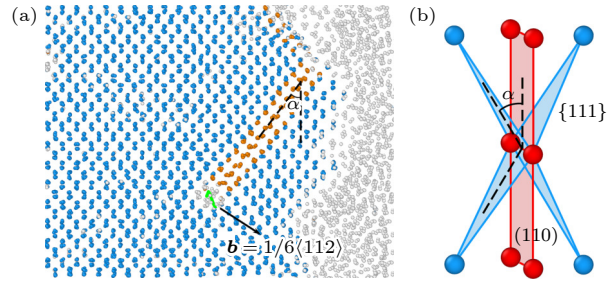


图 8 (a) 对 GaAs 晶体的生长等温弛豫一段时间后系统的原子结构; (b)  $\{111\}$  面与生长平面之间的几何关系示意图  
Fig. 8. (a) Atomic structure of the system after a period of isothermal relaxation for the growth of GaAs crystals; (b) schematic diagram of the geometric relationship between the  $\{111\}$  plane and the growth plane.

由图 9(a) 可以明显观察到, 当弛豫时间为 100 ps, 应变为 +0.04, +0.06 和 -0.06 时, (110) 界面的锯齿状形态以  $\{111\}$  小平面为界, 两个相邻的  $\{111\}$  小平面会形成一个夹角  $\beta$ . 由于体系采用周期性边界条件, 左右两侧同时生长这样的夹角型孪晶界. 随着弛豫时间的延长, 最终 4 个层错相交形成了一个菱形孪晶界, 如图 9(b) 所示. 本征堆垛层错 AB 在 B 处与另一个本征堆垛层错 BC 相交, 相交点 B 处形成了一段压杆位错 (Lomer-Cottrell dislocation), 其 Burgers 矢量为  $1/6\langle 110 \rangle$ , 图 9(c), (d) 为该位错形成过程的图解. 两个相交的堆垛层错连接处附近有两个肖克利不全位错, 如图 9(c) 所示. 这两个相近的肖克利不全位错相互靠近并发生位错反应, 矢量方程表示为

$$1/6 [\bar{2} \bar{1} 1] + 1/6 [\bar{1} \bar{2} 1] \rightarrow 1/6 [\bar{1} 1 0], \quad (7)$$

反应后的位错结构如图 9(d) 所示, 可以看作是两个终止堆垛层错的肖克利不全位错的复合体. 该位错位于两个层错面的交截处, 因此不能发生滑动, 是固定位错. Mitchell 和 Unal<sup>[45]</sup> 采用分子束外延技术在 GaAs 衬底上生长超晶格的实验研究中也发现了类似的 Lomer-Cottrell 位错结构.

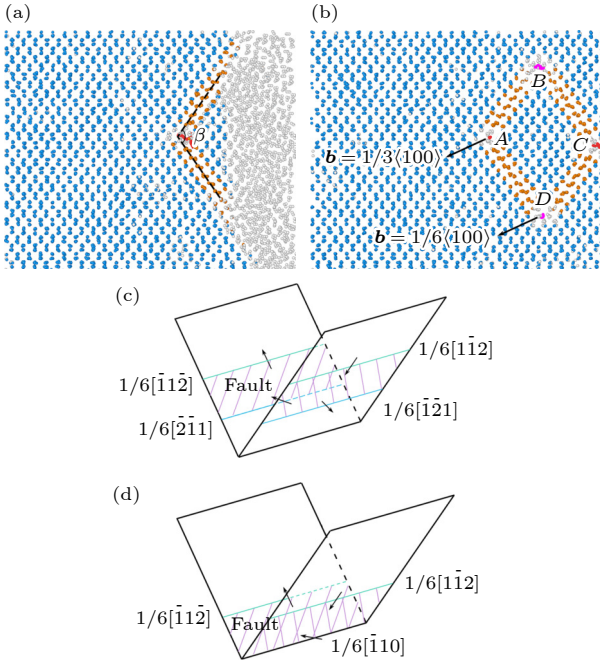


图9 压杆位错形成过程 (a) 100 ps; (b) 900 ps. 压杆位错形成图解 (c) 位错反应前; (d) 位错反应后

Fig. 9. Formation process of Lomer-Cottrell dislocation: (a) 100 ps; (b) 900 ps. Formation diagram of Lomer-Cottrell dislocation: (c) Before dislocation reaction; (d) after dislocation reaction.

## 4 结 论

对 GaAs 熔体在不同应变条件下沿 [110] 方向诱导结晶行为进行了分子动力学模拟, 采用最大标准团簇分析、双体分布函数和可视化分析方法对晶体的生长过程及缺陷的形成进行了研究. 可以得出以下 3 个结论.

1) 施加一定拉应变和较大的压应变后, 体系的初始晶体生长速率会发生降低, 且应变越大, 结晶速率越低. 这是由于固相部分应变能的增大, 减小了固液相的自由能差, 从而降低了晶体生长驱动力.

2) 应变可以抑制位错的形核, 也可以促进位错的形核, 合适的应变大小甚至能使晶体无位错生长. 当施加较小应变时, 位错密度显著降低, 体系形成的晶体相对标准, 在压应变为 -0.02 时诱导晶体的质量最好.

3) 随着晶体的生长, 体系形成以 {111} 小平面为边界的锯齿形界面, 孪晶会在该界面上形成. 施加拉应变越大, 生长面与 {111} 小平面之间的角度  $\alpha$  值越小, 形成孪晶缺陷越多, 结构越不规则.

这些分析结果为 GaAs 晶体生长提供了更深入的理解, 并将促进光电和微电器件的发展.

## 参考文献

- [1] Santos Gomes B, Masia F 2022 *Journal of Colloid and Interface Science* **625** 743
- [2] Wang P H, Tang J L, Kang Y B, Fang X, Fang D, Wang D K, Lin F Y, Wang X H, Wei Z P 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 087803 (in Chinese) [王鹏华, 唐吉龙, 亢玉彬, 方铨, 房丹, 王登魁, 林逢源, 王晓华, 魏志鹏 2019 物理学报 **68** 087803]
- [3] Carter M A, Mottram A, Peaker A R, Sudlow P D, White T 1971 *Nature* **232** 469
- [4] Chuang L C, Sedgwick F G, Chen R, Ko W S, Moewe M, Ng K W, Tran T T D, Chang-Hasnain C 2011 *Nano Lett.* **11** 385
- [5] Currie M, Dianat P, Persano A, Martucci M C, Quaranta F, Cola A, Nabet B 2013 *Sensors* **13** 2475
- [6] Ukita H, Uenishi Y, Tanaka H 1993 *Science* **260** 786
- [7] Mangla O, Roy S 2020 *Materials Letters* **274** 128036
- [8] Papež N, Dallaev R, Tălu Ș, Kaštyl J 2021 *Materials* **14** 3075
- [9] Ghalgaoui A, Reimann K, Woerner M, Elsaesser T, Flytzanis C, Biermann K 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 266602
- [10] Whelan J M, Wheatley G H 1958 *J. Phys. Chem. Solids* **6** 169
- [11] Wu T, Wei J, Liu H, Ma S, Chen Y, Ren J 2021 *Electronics* **10** 1482
- [12] Murakami M 2002 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **3** 1
- [13] Jiang P, Balram K C 2020 *Opt. Express* **28** 12262
- [14] Zhan L, Xia F, Xia Y, Xie B 2018 *ACS Sustainable Chem. Eng.* **6** 1336
- [15] Sosso G C, Chen J, Cox S J, Fitzner M, Pedevilla P, Zen A, Michaelides A 2016 *Chem. Rev.* **116** 7078
- [16] Shibuta Y, Sakane S, Miyoshi E, Okita S, Takaki T, Ohno M 2017 *Nat. Commun.* **8** 10
- [17] Jia T, Wang Z, Tang M, Xue Y, Huang G, Nie X, Lai S, Ma W, He B, Gou S 2022 *Nanomaterials* **12** 611
- [18] Thu H T T, Hoang V V 2010 *Computa. Mater. Sci.* **49** S221
- [19] Luo J, Gao T, Ren L, Xie Q, Tian Z, Chen Q, Liang Y 2019 *Mater. Sci. Semicon. Proc.* **104** 104680
- [20] Gulluoglu A N, Zhu X, Tsai C T 2001 *J. Mater. Sci.* **36** 3557
- [21] Meduoye G O, Bacon D J, Evans K E 1988 *J. Crystal Growth* **88** 397
- [22] Subramanyam N, Tsai C T 1995 *J. Mater. Proc. Technol.* **55** 278
- [23] Zhu X A, Tsai C T 2004 *Computa. Mater. Sci.* **29** 334
- [24] Gulluoglu A N, Tsai C T, Hartley C S, Chait A 1994 *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **2** 67
- [25] Pavia F, Curtin W A 2015 *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **23** 055002
- [26] Plimpton S 1995 *J. Computa. Phys.* **117** 1
- [27] Albe K, Nordlund K, Nord J, Kuronen A 2002 *Phys. Rev. B* **66** 035205
- [28] Fichtorn K A, Tiwary Y, Hammerschmidt T, Kratzer P, Scheffler M 2011 *Phys. Rev. B* **83** 195328
- [29] Chen Q, Chen Q, Liang Y C, Gao T H, Tian Z A, Xie Q 2017 *Chin. Sci. Bulletin* **62** 1386 (in Chinese) [陈庆, 陈茜, 梁永超, 高廷红, 田泽安, 谢泉 2017 科学通报 **62** 1386]
- [30] Hoover W G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 1695
- [31] Tian Z A, Liu R S, Dong K J, Yu A B 2011 *EPL* **96** 36001
- [32] Terban M W, Billinge S J L 2022 *Chem. Rev.* **122** 1208
- [33] Tian Z A, Dong K J, Yu A B 2013 *AIP Confer. Proc.* **1542** 373
- [34] Wei G C, Tian Z A 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 246401 (in Chinese) [韦国翠, 田泽安 2021 物理学报 **70** 246401]
- [35] Hu L, Tian Z, Liang Y, Gao T, Chen Q, Zheng Q, Luo Y, Xie Q 2022 *J. Alloys Compounds* **897** 162743
- [36] Richert R, Angell C A 1998 *J. Chem. Phys.* **108** 9016



- [37] Capaccioli S, Prevosto D, Lucchesi M, Amirkhani M, Rolla P 2009 *J. Non-Crystalline Solids* **355** 753
- [38] Scott G D, Mader D L 1964 *Nature* **201** 382
- [39] Finney J L, Bernal J D 1997 *Proc. Royal Society of London. A. Mathemat. Phys. Sci.* **319** 479
- [40] Sheng H W, Luo W K, Alamgir F M, Bai J M, Ma E 2006 *Nature* **439** 419
- [41] Stukowski A, Bulatov V V, Arsenlis A 2012 *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **20** 085007
- [42] Liu C S, Xia J, Zhu Z G, Sun D Y 2001 *J. Chem. Phys.* **114** 7506
- [43] Stukowski A 2009 *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **18** 015012
- [44] Li D H, Moore R A, Wang S 1988 *J. Chem. Phys.* **89** 4309
- [45] Mitchell T E, Unal O 1991 *J. Electro. Mater.* **20** 723

## Molecular dynamics simulations of GaAs crystal growth under different strains\*

Yuan Yong-Kai<sup>1)</sup>    Chen Qian<sup>1)†</sup>    Gao Ting-Hong<sup>1)</sup>    Liang Yong-Chao<sup>1)</sup>

Xie Quan<sup>1)</sup>    Tian Ze-An<sup>1)2)</sup>    Zheng Quan<sup>1)</sup>    Lu Fei<sup>1)</sup>

1) (State Key Laboratory of Public Big Data, Institute of Advanced Optoelectronic Materials and Technology, College of Big Data and Information Engineering, Guizhou University, Guiyang 550025, China)

2) (College of Computer Science and Electronic Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China)

( Received 23 September 2022; revised manuscript received 17 May 2023 )

### Abstract

The high-quality growth of GaAs crystals is extremely essential for the fabrication of high-performance high-frequency microwave electronic devices and light-emitting devices. In this work, the molecular dynamics (MD) simulation is used to simulate the induced crystallization of GaAs crystal along the [110] orientation. The effects of strain on the growth process and defect formation are analyzed by the largest standard cluster analysis, the pair distribution function, and visualization analysis. The results indicate that the crystallization process of GaAs crystal changes significantly under different strain conditions. At the initial stage, the crystal growth rate of the system decreases after a certain tensile strain and a large compressive strain have been applied, and the greater the strain, the lower the crystallization rate is. In addition, as the crystal grows, the system forms a zigzag interface bounded by the {111} facet, and the angle between the growth plane and the {111} facet affects the morphology of the solid-liquid interface and further affects the formation of twins. The larger the applied tensile strain and the smaller the angle, the more twin defects will form and the more irregular they will be. At the same time, a large proportion of the dislocations in the system is associated with twins. The application of strain can either inhibit or promote the nucleation of dislocations, and under an appropriate amount of strain size, crystals without dislocations can even grow. The study of the microstructural evolution of GaAs on an atomic scale provides a reference for crystal growth theory.

**Keywords:** molecular dynamics, GaAs, induced crystallization, strain

**PACS:** 68.08.De, 64.70.kg, 81.10.Aj, 81.10.Fq

**DOI:** 10.7498/aps.72.20221860

\* Project supported by the Basic Research Program (Natural Science) of Guizhou Province, China (Grant Nos. ZK[2022]042, ZK[2021]051, [2017]5788), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51761004, 51661005, 11964005), the Industry and Education Combination Innovation Platform of Intelligent Manufacturing and Graduate Joint Training Base at Guizhou University, China (Grant No. 2020-520000-83-01-324061), and the Fostering Project of Guizhou University, China (Grant No. [2020]33).

† Corresponding author. E-mail: [chenzhangqianer@163.com](mailto:chenzhangqianer@163.com)



## GaAs晶体在不同应变下生长过程的分子动力学模拟

袁用开 陈茜 高廷红 梁永超 谢泉 田泽安 郑权 陆飞

### Molecular dynamics simulations of GaAs crystal growth under different strains

Yuan Yong-Kai Chen Qian Gao Ting-Hong Liang Yong-Chao Xie Quan Tian Ze-An Zheng Quan Lu Fei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 136801 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221860

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221860>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 高应变率下温度对单晶铁中孔洞成核与生长影响的分子动力学研究

Molecular dynamics simulation of effect of temperature on void nucleation and growth of single crystal iron at a high strain rate

物理学报. 2019, 68(24): 246102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190920>

#### 单晶Ce冲击相变的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of shock-induced isostructural phase transition in single crystal Ce

物理学报. 2020, 69(11): 116202 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200323>

#### 基于分子动力学模拟的铜晶面石墨烯沉积生长机理

Deposition and growth mechanism of graphene on copper crystal surface based on molecular dynamics simulation

物理学报. 2020, 69(22): 226102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200781>

#### 水滴撞击结冰过程的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of freezing process of water droplets impinging on cold surface

物理学报. 2018, 67(5): 054702 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172174>

#### 应变诱导单层NbSi<sub>2</sub>N<sub>4</sub>材料磁转变的第一性原理研究

First principles study of magnetic transition of strain induced monolayer NbSi<sub>2</sub>N<sub>4</sub>

物理学报. 2022, 71(20): 206303 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220939>

#### 循环载荷下纳米铜/铝薄膜孔洞形核、生长及闭合的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of void nucleation, growth and closure of nano-Cu/Al films under cyclic loading

物理学报. 2019, 68(13): 133101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181901>