

## Оригинальные статьи

Научная статья

УДК 537.226

<https://doi.org/10.17308/kcmf.2023.25/11482>

### Микро- и наноструктуры GaN, селективно выращенные на профилированных подложках сапфира методом ПА-МПЭ без использования литографии

А. Н. Семенов<sup>1</sup>✉, Д. В. Нечаев<sup>1</sup>, С. И. Трошков<sup>1</sup>, Д. С. Березина<sup>1</sup>,  
Арва Сауд Аббас (Arwa Saud Abbas)<sup>2</sup>, В. Н. Жмерик<sup>1</sup>

<sup>1</sup>ФГБУН Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе,  
Политехническая, 26, Санкт-Петербург 194021, Российская Федерация

<sup>2</sup>Центр науки и технологий короля Абдулазиза (King Abdulaziz City for Science and Technology),  
King Abdullah Rd, Al Raed, Riyadh 12354, Саудовская Аравия

#### Аннотация

Цель статьи – разработка технологии формирования упорядоченных массивов наноколонн (НК) и микрокристаллов GaN методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии (ПА-МПЭ) на профилированных подложках сапфира (ППС) большого диаметра с микроконусным профилем. В предлагаемом методе исключено использование низкопроизводительных и дорогостоящих методов нанолитографии. Статья направлена на более глубокое понимание процессов, определяющих кинетику роста наноколонн III-N методом ПА МПЭ на профилированных подложках сапфира с множественной ориентацией различных неполярных и полярных плоскостей.

Предложен новый технологический процесс изготовления НК GaN с помощью ПА-МПЭ, в котором обеспечивается селективность их роста на вершинах микроконусов ППС и подавляется рост на полуполярных плоскостях этих подложек. НК и микрокристаллы GaN были выращены методом ПА-МПЭ на коммерчески доступных ППС.

Разработана технология формирования разряженных массивов наноколонн GaN без применения литографических процедур. Установлены режимы, позволяющие формировать микрокристаллы и НК с различным диаметром: от 30 нм до нескольких микрон. Построена диаграмма роста GaN методом ПА МПЭ на ППС, демонстрирующая границы технологических режимов формирования GaN НК и микрокристаллов с различной топографией поверхности.

**Ключевые слова:** пространственно селективный рост, нитевидные кристаллы, микрокристаллы, наноколонки, плазменно-активированная молекулярно-пучковая эпитаксия, широкозонные полупроводниковые соединения A<sup>3</sup>N

**Источник финансирования:** Исследование выполнено при финансовой поддержке министерства науки и высшего образования Российской Федерации (соглашение № 075-15-2022-1224 Био-Свет)

**Для цитирования:** Семенов А. Н., Нечаев Д. М., Трошков С. И., Березина Д. С., Аббас А. С., Жмерик В. Н. Микро- и наноструктуры GaN, селективно выращенные на профилированных подложках сапфира методом ПА-МПЭ без использования литографии. *Конденсированные среды и межфазные границы*. 2023;25(4): 532–541. <https://doi.org/10.17308/kcmf.2023.25/11482>

**For citation:** Semenov A. N., Nechaev D. M., Troshkov S. I., Berezina D. S., Abbas A. S., Jmerik V. N. Micro- and nanostructures of GaN selectively grown on patterned sapphire substrates by PA-MBE without lithography techniques. *Condensed Matter and Interphases*. 2023;25(4): 532–541. <https://doi.org/10.17308/kcmf.2023.25/11482>

✉ Семенов Алексей Николаевич, e-mail: [semenov@beam.ioffe.ru](mailto:semenov@beam.ioffe.ru)

© Семенов А. Н., Нечаев Д. М., Трошков С. И., Березина Д. С., Аббас А. С., Жмерик В. Н., 2023



Контент доступен под лицензией Creative Commons Attribution 4.0 License.

## 1. Введение

В последнее время широко исследуются трехмерные (3D) нано- и микрокристаллы на основе нитридов металлов третьей группы ( $A^3N$ ) с преимущественной ориентацией вдоль осей  $c$  или  $-c$ , которые также принято называть наноколоннами (НК) или нанопроводами. Такие структуры важны как для фундаментальных исследований свойств  $A^3N$  соединений, так и для создания на их основе новых электронных и оптоэлектронных приборов. В последнем случае наноколончатые гетероструктуры позволяют в значительной степени улучшить параметры светоизлучающих и фотоприемных устройств, работающих в различных спектральных диапазонах [1–4]. На основе гетероструктур InGaN/GaN и GaN/AlGaN типа “core-shell” успешно реализованы высокоэффективные светодиоды видимого и ультрафиолетового (УФ) диапазонов соответственно [5–10]. В частности, на основе НК AlN структура Zhao et al. [9] были продемонстрированы самые коротковолновые УФ-светодиоды, излучающие на длине волны  $\lambda = 207$  нм, которые показали не только высокое структурное совершенство из-за отсутствия в них прорастающих дислокаций, но и высокую эффективность вывода ТМ-поляризованного излучения через верхнюю  $c$ -плоскость отдельных НК [11]. Кроме того, для AlGaN НК была обнаружена повышенная эффективность  $p$ -легирования атомами Mg по сравнению с планарными слоями того же состава [12]. И наконец, НК в системе материалов  $A^3N$  перспективны для разработки новых типов излучателей, в том числе и источников одиночных фотонов в видимом и УФ диапазонах [13–16].

Одним из основных требований к конструкциям большинства приборных структур на основе НК является их регулярное расположение по поверхности подложки с различным расстоянием между индивидуальными НК – от минимального  $\ll 1$  мкм (в светодиодах) до нескольких микрон (в источниках одиночных фотонов). Для решения этой задачи были разработаны методы пространственно-селективного эпитаксиального роста НК на основе  $A^3N$ , в которых формирование предпочтительных мест зародышеобразования для адатомов группы III обеспечивается с помощью нанолитографических операций на поверхности различных диэлектрических масок. В большинстве этих работ используются процессы наноимпринтинга (нанопечати) [17] или электронно-лучевой литографии [18, 19]. Селективность роста НК обеспечивается за счет его про-

текания в открытых областях наномасок, т. е. на поверхности нижележащих подложек, при его полном отсутствии на поверхности масочных диэлектриков. Эти методы обеспечивают пространственное разрешение от нескольких сотен до десятков нанометров, а также характеризуются относительно высокими показателями пространственной селективности и однородности роста НК.

Однако данным методам присущи и некоторые недостатки. Для электронно-лучевой литографии это, в первую очередь, низкая производительность метода, исключая его применение в промышленном производстве приборов на подложках большого диаметра. Высокая стоимость матриц для наноимпринтинга также сдерживает широкое применение этого метода. Кроме того, несмотря на успехи нанолитографических методов, для них все еще не до конца решены технологические проблемы обеспечения высокой однородности структур на подложках большой площади и достижения достаточной селективности роста с подавлением паразитного роста в промежутках между НК [14]. Кроме того, для всех нанолитографических методов характерны краевые эффекты, связанные с чрезмерным накоплением адатомов вблизи края диэлектрической маски. И, наконец, используемые в этих методах резистивные маски из органических материалов могут служить источником загрязнения НК.

Для решения вышеназванных проблем ведется активный поиск методов роста регулярно распределенных НК без использования нанолитографических процессов [20–25]. В наших прошлых работах [20–22] для селективного роста НК  $A^3N$  методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии (ПА МПЭ) было предложено использовать профилированные подложки  $c$ -сапфира (ППС) с отдельными микроконусами с характерными значениями диаметров оснований, высот и расстояний между вершинами несколько микрон. Такие подложки сравнительно легко изготавливаются с помощью стандартных фотолитографических методов и жидкостного травления коммерческих планарных подложек  $c$ -сапфира [26]. В настоящее время ППС используются главным образом для изготовления светодиодных гетероструктур, эффективность которых повышается благодаря эффектам снижения концентраций протяженных дефектов (дислокаций) и улучшения вывода излучения через полуполярные плоскости таких подложек [27].

В нашей работе [21] была продемонстрирована возможность селективного роста азот-поляр-

ных НК GaN(000-1) методом ПА МПЭ в азот-обогащенных условиях на вершинах микроконусов ППС и была представлена качественная модель, описывающая такой рост с учетом особенностей термодинамики (поверхностной энергии) и поверхностной подвижности адатомов на различных полярных и полуполярных кристаллографических плоскостях. Было изучено влияние на кинетику роста одиночных НК геометрии ППС, шероховатости исходной поверхности, температуры подложки, отношения потоков атомов третьей группы (*Ga*) к активированному азоту  $Ga/N_2^*$ . В ходе этих исследований была определена важная роль начальных стадий роста в обеспечении селективного роста НК GaN. Кроме того, было изучено влияние потока In в качестве сурфактанта на рост светоизлучающих НК с квантовыми ямами (КЯ) InGaN/GaN и определены оптимальные отношения потоков всех ростовых потоков и температуры подложки, обеспечивающие максимальную селективность роста НК GaN, а также формирование КЯ InGaN/GaN в них [22].

Применение ППС для селективного роста микроколонн  $A^3N$  было продемонстрировано и другими группами. В частности, в недавней работе Ahn et al. [25] данный подход использовался для получения GaN НК с диаметром несколько микрон на таких подложках с помощью газовой эпитаксии из металл-органических соединений. В этой работе варьирование диаметров вершин микроконусов достигалось с помощью предэпитаксиальной химико-механической полировки ППС, во время которой происходило расширение плоских вершин.

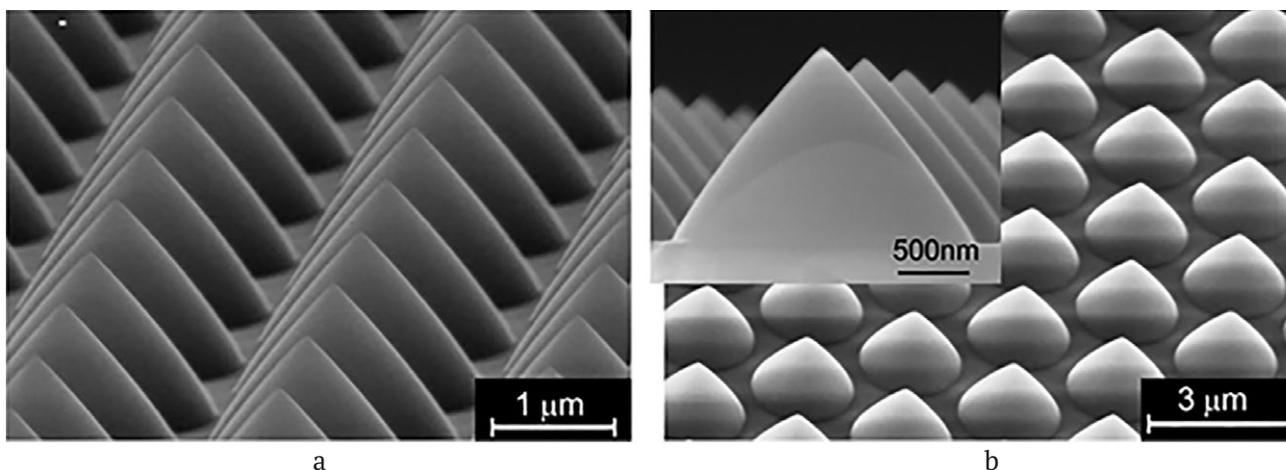
В данной работе представлены результаты исследования особенностей роста GaN методом ПА МПЭ на ППС с микроконусами в широком диа-

пазоне варьирования температур роста и соотношения потоков галлия и плазменно-активированного азота. Изменение параметров роста позволило варьировать размеры GaN НК в широком диапазоне от нескольких десятков нм до 1 мкм, а также переходить от роста обычных цилиндрических (гексагональных) НК к росту микрокристаллов со сложной топологией полярных и полуполярных кристаллографических плоскостей.

## 2. Экспериментальная часть

Образцы были выращены методом ПА-МПЭ на коммерчески доступных ППС с микроконусами с диаметром оснований 2 мкм, высотой 1.4 мкм и расстоянием между ними 2.1 мкм, как показано на изображениях, полученных с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) и приведенных на рис. 1.

Перед началом роста НК GaN проводился отжиг подложек при температуре 800 °С и ее нитризация при той же температуре в потоке активного азота 0.5 монослоев (МС)/сек (где толщина 1МС = 0.25нм), калибровка которого проводилась по измерениям скорости роста AlN в металл-обогащенных условиях. Затем во всех образцах выращивались зародышевые слои GaN в галлий-обогащенных условиях с отношением потоков  $Ga/N_2^* = 2.2$  ( $N_2^* = 0.1$ МС/с) при температуре подложки 760–770 °С. Толщина этого слоя в планарных областях ППС составляла ~55 нм. Дальнейший рост GaN НК проводился с использованием двух режимов, различавшихся, в первую очередь, значениями потоков галлия (*Ga*) при одинаковом потоке активного азота ( $N_2^* = 0.4$  МС/с). В первом режиме рост двух образцов проводился в азот-обогащенных условиях с одинаковым соотношением потоков  $Ga/N_2^* \sim 0.25$  и при раз-



**Рис. 1.** Изображения РЭМ исходной поверхности ППС, полученные с различным увеличением. На вставке в (b) приведено РЭМ-изображение поперечного сечения одного микроконуса

личной температуре подложки (см. ниже) в течение 4 часов в импульсном режиме с прерыванием роста через каждые 30 секунд за счет перекрытия всех ростовых потоков с помощью главной заслонки. В ходе этой ростовой паузы в течение 30 с наблюдалось повышение температуры подложки почти по линейному закону от начальных (ростовых) значений 760 и 780 °C вплоть до 785 и 805 °C соответственно. Величины температур измерялись с помощью инфракрасного пирометра. После роста НК часть образцов травилась в КОН растворе (10 %) в течение 10 минут при 20 °C. Во втором режиме GaN НК выращивались на тех же ППС в течение 5 ч в Ga-обогащённых условиях роста при  $Ga/N_2^* \sim 1.5$  (без учета десорбции Ga) и различных температурах подложки от 695 до 795 °C. Во всех процессах роста НК, описанных выше, в качестве сурфактанта использовался поток индия  $In = 0.2-0.4$  МС/сек.

Топографии поверхностей НК GaN исследовались с помощью РЭМ CamScan 4-88-DV-100.

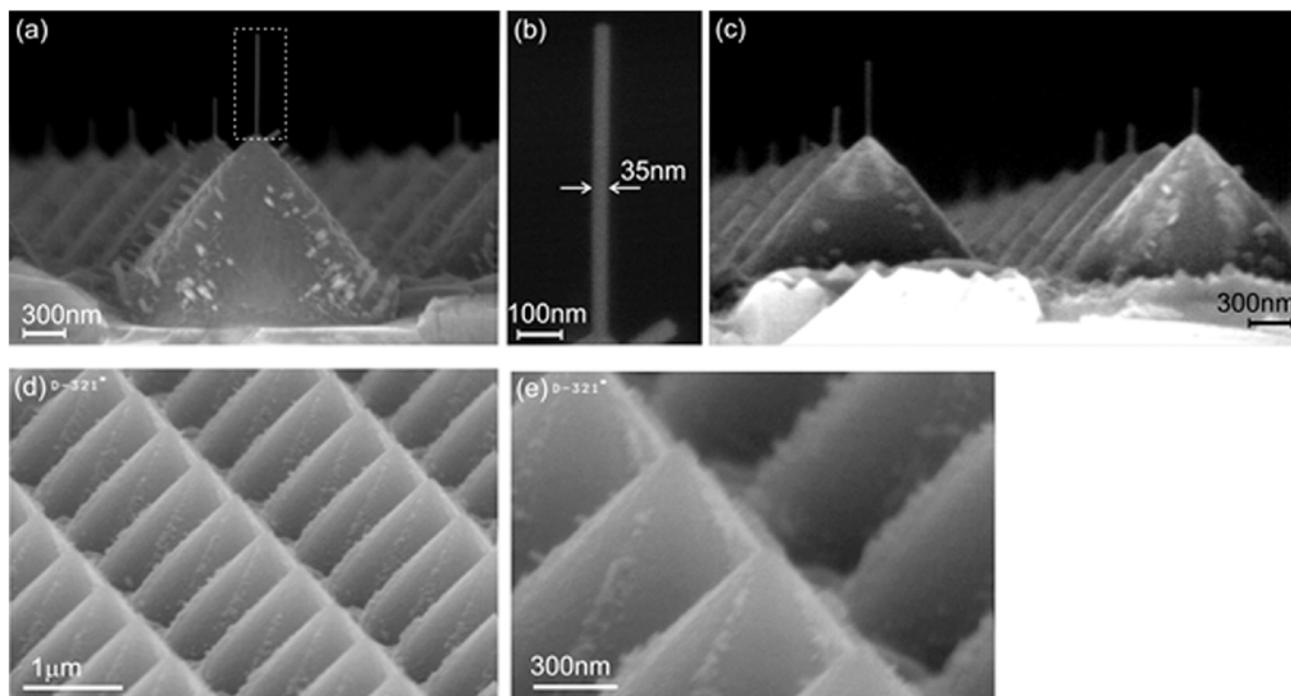
### 3. Результаты и обсуждение

#### 3.1. Селективный рост GaN НК на ППС в азот-обогащённых условиях

В данной работе по сравнению с нашей предыдущей работой [21] для повышения селек-

тивности роста GaN НК (т. е. подавления роста паразитных НК на боковых гранях микроконусов) и уменьшения их диаметра использовались относительно малые потоки Ga ( $Ga \sim 0.1$  МС/с) и низкие отношения потоков ( $Ga/N_2^* = 0.25$ ). Кроме того, повышению селективности на наш взгляд способствовал переход от постоянного к импульсному режиму роста с кратковременным отжигом образца для стимуляции восходящей диффузии атомов Ga к вершине микроконусов. Повышение температуры подложки на 20 °C позволяло большему числу адатомов достичь вершин микроконусов ППС. Высокую степень пространственной селективности роста НК GaN с высотой 500–700 нм и диаметром вплоть до 35 нм подтвердили их РЭМ-изображения на рис. 2а-с. Отметим, что в прошлой работе [21] типичные диаметры GaN НК составляли 50–100 нм.

Однако рост НК наблюдался лишь при относительно низких температурах подложки 760/785 °C во время роста/отжига НК соответственно, а при их повышении до 780/805 °C рост НК на вершинах ППС отсутствовал, о чем свидетельствуют РЭМ изображения на рис. 2 д,е. Отсутствие роста при повышении температуры связывается нами с возрастанием десорбции атомов Ga и термическим разложением НК GaN.



**Рис. 2** РЭМ изображения НК GaN, выращенных с использованием азот-обогащенных условий ( $Ga/N_2^* = 0.25$ ) и кратковременных прерываний роста с повышением температуры от 760 до 785 °C (а-с) и от 780 до 805 °C (д, е). (а) – общий вид НК после роста; (б) – увеличенное изображение НК, выделенной на (а) пунктирной линией; (с) общий вид НК после травления в КОН

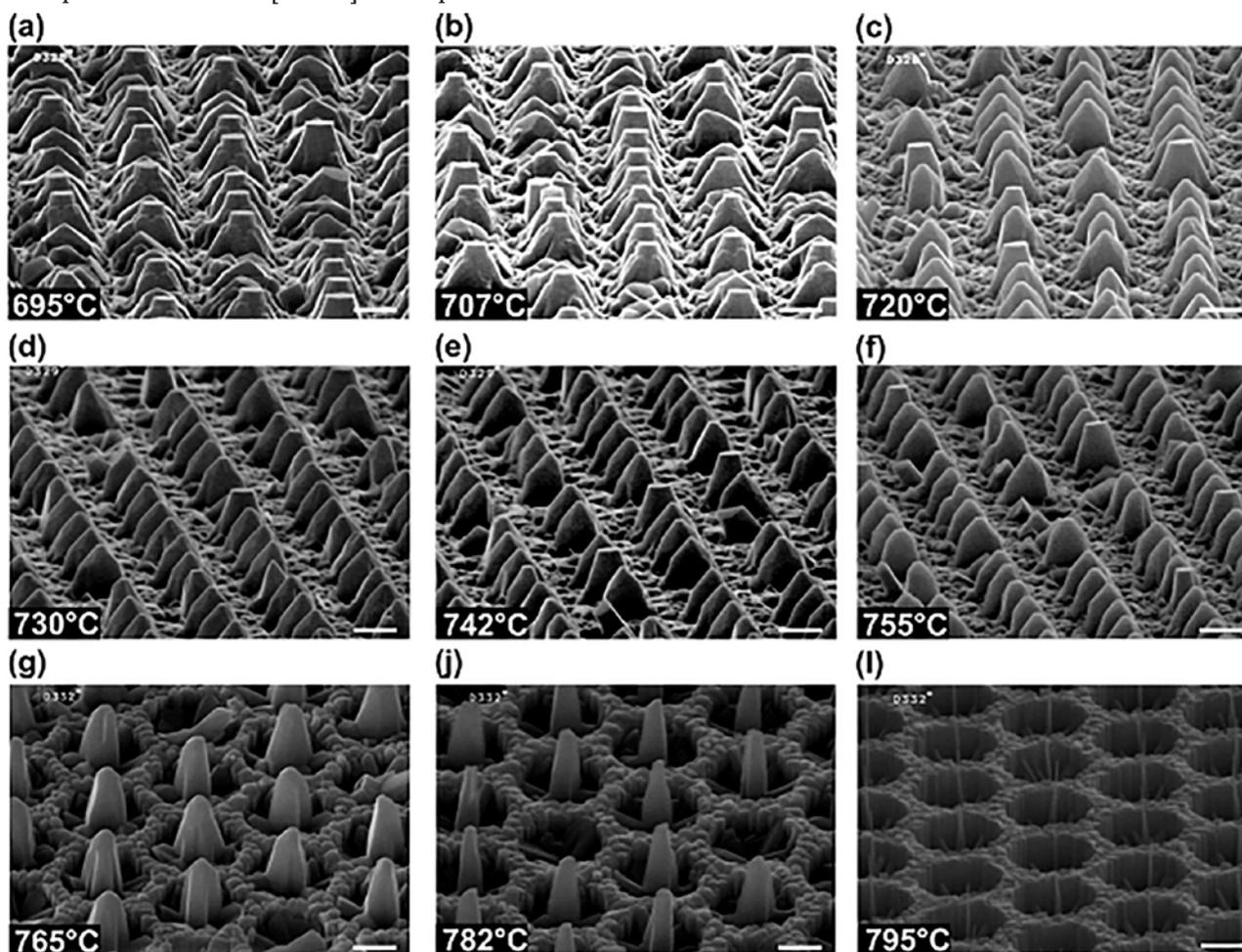
К сожалению, зарождение GaN НК на вершинах ППС носило вероятностный характер, и рост НК наблюдался не на каждой вершине даже при относительно низких температурах подложки, как показано на рис. 2а. Это, скорее всего, связано с разбросом параметров подложек и отсутствием на некоторых вершинах плоских нанобластей с ориентацией (0001), на которых происходит зарождение НК с азотной полярностью [000-1] [21]. Отметим, что на полуполярных плоскостях ППС также наблюдалось формирование паразитных GaN НК меньшей высоты, которые были направлены перпендикулярно этим плоскостям.

Отметим, что образцы после травления в KOH не обнаружили существенных изменений формы НК на вершинах ППС, но при этом наблюдалось полное травление (т. е. исчезновение) паразитных НК на полуполярных плоскостях. Этот результат свидетельствует об относительно медленном травлении полярно ориентированного GaN [000-1] на вершинах НК и

подтверждает высокую химическую стабильность неполярных плоскостей {1-100} к травлению в растворах KOH, что недавно было продемонстрировано Tautz et al. [28].

### 3.2. Рост GaN на ППС в металл-обогащённых условиях

Рис. 3 показывает РЭМ изображения микрокристаллов и наноколонн, сформировавшихся в одинаковых Ga-обогащённых условиях ( $Ga/N_2^* = 1.5$ ) при температуре подложки, варьирующейся от 695 до 795 °C. На изображениях всех микро- и нанокристаллов GaN наблюдалось полное соответствие между их плотностью и плотностью исходных микроконусов на поверхности ППС. Более того, при низких температурах роста (695–707 °C) многие (> 50 %) верхние части микрокристаллов GaN имели форму гексагональных параллелепипедов с высотой ~300 нм и плоскими вершинами диаметром ~0.5 мкм, как показано на рис. 3а, б.



**Рис. 3.** РЭМ-изображения микро- и нанокристаллов GaN, выращенных в Me- (Ga) обогащённых условиях ( $Ga/N_2^* = 1.5$ ) при различных температурах подложки (а) – 695 °C, (б) – 707 °C, (с) – 720 °C, (д) – 730 °C, (е) – 742 °C, (ф) – 755 °C, (г) – 765 °C, (и) – 782 °C, (и) – 795 °C

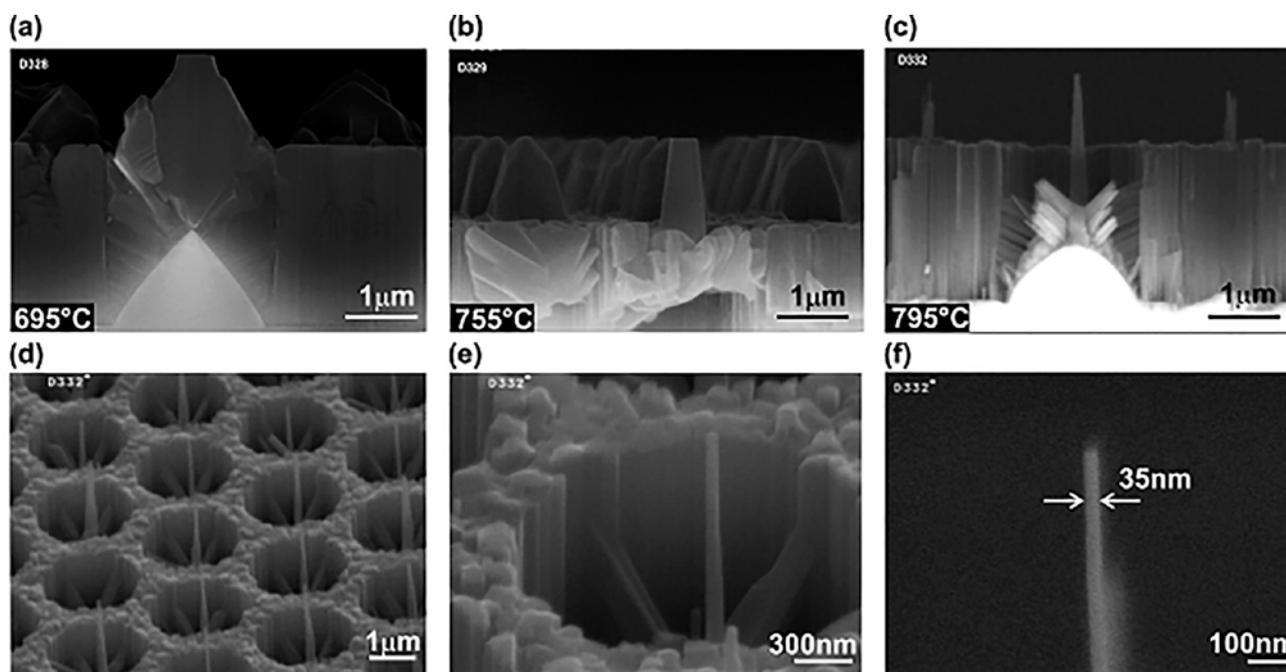
При возрастании температуры роста вплоть до 755 °С наблюдалось уменьшение числа таких микрокристаллов GaN с плоскими вершинами, диаметры которых также уменьшались и, более того, наблюдалась наклонная (pencil-like) огранка вершин, как показано на рис. 3b–f. Дальнейшее повышение температуры до 795 °С приводило к уменьшению диаметра микрокристаллов GaN вплоть до перехода к росту одиночных наноколонн с диаметром, уменьшающимся в направлении вершин вплоть до минимальных значений диаметра < 50 нм. Важно, что эти одиночные НК были точно расположены в центрах регулярных микроотверстий диаметром 2 мкм (т. е. в полном соответствии с топологией конусов ППС). Слои GaN, выросшие на плоских участках ППС, образуют «сотовую» плоскую морфологию поверхности, как показано на рис. 3g–i.

Рис. 4a–с показывают поперечные изображения сколов нескольких структур с НК GaN, выращенных при различных температурах подложки, и общий вид которых приводится на рис. 3. На рис. 4a видно, что рост GaN при низких температурах (695 °С) начинается на вершине ППС в виде инвертированной пирамиды (т. е. с вершиной ориентированной вниз) подобно гексагональным пирамидам, которые наблюдались

нами в аналогичной работе по росту InN на ППС в металл-обогащенных условиях [20].

Во время роста этой пирамиды при достижении ею высоты ~1 мкм ее наклонные (полуполярные) плоскости роста зеркально изменяли ориентацию, и рост продолжался в виде нормально ориентированной пирамиды (т. е. с вершиной наверху). Однако при достижении этой пирамидой высоты около 1 мкм угол наклонных плоскостей опять изменялся, и дальнейший рост GaN происходил в виде гексагональной плосковершинной пирамиды, ориентированной в вертикальном направлении. Отметим, что одновременно с этим ростом от вершин ППС наблюдался рост GaN и на наклонных (полуполярных) плоскостях перпендикулярно им, как показано на рис. 4a. На плоских участках поверхности ППС происходил рост сплошных слоев GaN с относительно гладкой топографией поверхности по сравнению с шероховатой топографией слоев, выращенных на тех же плоских участках ППС в азот-обогащенных условиях (см. рис. 2a).

При повышении температуры роста, в первую очередь, наблюдалось уменьшение диаметров НК и переход к их более вертикально-ориентированному росту боковых стенок. При этом в области средних температур подложки (720–765 °С) НК демонстрировали изменение угла



**Рис. 4.** РЭМ-изображения поперечных сечений микрокристаллов и НК GaN, выращенных в Ga-обогащенных условиях ( $Ga/N_2^* = 1.5$ ) при различных температурах подложки: (a) – 695 °С, (b) – 755 °С, (c) – 795 °С. (d–f) – РЭМ изображения с различным увеличением последней НК (с), выращенной при максимальной температуре подложки 795 °С

наклона стенок. Однако в образце, выращенном при максимальной в этой работе температуре 795 °С, диаметр НК изменялся от ~250 нм у основания до 35 нм в верхней части при высоте НК более 2 мкм. Важно, что скорость роста НК существенно превышала скорость роста объемного слоя GaN над плоской областью ППС, что за пять часов роста приводило к превышению высот вершин НК над уровнем сплошного слоя примерно на 1 мкм.

Таким образом, серия экспериментов по росту GaN на ППС методом ПА МПЭ при существенно различных условиях роста показали возможности существенного варьирования формы растущих НК и микро(нано)-кристаллов.

Согласно теореме Вульфа равновесная форма любого кристалла определяется минимальной поверхностной энергией его граней – различно ориентированных кристаллографических плоскостей [29]. Для гексагонального полупроводникового соединения GaN расчеты из первых принципов показывают существенно меньшие поверхностные энергии неполярных плоскостей [1-100] и [11-20] по сравнению с полярными и полуполярными плоскостями [0001], [000-1], [11-22], [1-101], [1-102] и др. [30]. Поэтому НК GaN в равновесных условиях должны демонстрировать преимущественный вертикальный рост в одном из двух полярных направлений – [0001] или [000-1].

Результаты этой работы по росту N-полярных НК GaN на ППС в сильно азот-обогащенных условиях ПА МПЭ в целом подтверждают вышеприведенный вывод (см. рис. 2) и полностью соответствуют результатам нашей прошлой работы [21]. Рост подобных НК в металл-обогащенных условиях при высоких температурах подложки (~800 °С) обнаружен впервые и его важной особенностью является рост НК почти на всех вершинах микроконусов ППС в отличие от НК, случайно формирующихся на этих же вершинах в азот-обогащенных условиях. Следует также отметить возможность формирования микро- и нанокристаллов GaN сложной формы с множественными гранями полуполярной ориентации с помощью их роста в Ga-обогащенных условиях при низких и средних значениях температуры подложки (695–720 °С и 720–765 °С соответственно).

Результаты по росту НК GaN на ППС в Me-обогащенных условиях свидетельствует о значительной роли кинетических факторов ПА МПЭ в этом режиме роста. Действительно, при повы-

шении температуры подложки во время роста GaN в номинально металл-обогащенных условиях в первую очередь можно предположить существенное возрастание скорости тепловой десорбции Ga выше температуры 700 °С ( $Ga^{TD}$ ), где ее значение для плоскости [0001] превышает 0.3 МС/с [31, 32]. Это приводит к исчезновению адсорбционных слоев Ga на поверхности GaN (монослой для (000-1)-GaN и бислоем в случае роста (0001) GaN), обеспечивающих высокую подвижность всех адатомов и, как следствие, 2D режимы роста с атомарно-гладкой морфологией поверхности. При повышении температур подложки (> 750 °С) следует ожидать начала теплового конгруэнтного разложения GaN со скоростью ( $Ga^{CD}$ ) [33, 34]. Эти процессы приводят к существенному изменению эффективного отношения потоков ( $Ga - Ga^D - Ga^{CD}$ )/( $N_2^* - N_2^{CD}$ ), которое снижалось по мере повышения температуры.

Таким образом, форма НК GaN определяется не только равновесными значениями поверхностных энергий различно ориентированных плоскостей. К сожалению, точный количественный расчет процессов роста НК GaN в неравновесных металл-обогащенных условиях невозможен, поскольку в известной нам литературе отсутствуют параметры тепловой десорбции и конгруэнтного разложения для различных кристаллических граней GaN. Тем не менее, для качественного объяснения переходов между сложными формами микро- и нанокристаллов GaN на ППС можно использовать зависимости теоретически рассчитанных значений относительных поверхностных энергий различных плоскостей от химического потенциала азота в варьируемых стехиометрических условиях ПА МПЭ. Такие зависимости были построены в работе Lee et al. [30], и согласно им только в азот-обогащенных условиях плоскость (000-1)<sub>N</sub> является наиболее стабильной, т. е. имеет меньшую поверхностную энергию по сравнению с энергиями других плоскостей. Однако при переходе в Me-обогащенные условия (т. е. при уменьшении химического потенциала азота) наблюдается другое соотношение между поверхностными энергиями плоскостей, и наименьшую энергию имеют полуполярные плоскости {11-2-2}<sub>Ga</sub>. Это объясняет наблюдавшийся нами начальный рост инвертированных пирамид в сильно Ga-обогащенных условиях. Эти исследования особенностей кристаллографии роста GaN на ППС в различных условиях ПА МПЭ будут продолжены в будущем.

На настоящем этапе исследований можно построить схематичную диаграмму различных режимов роста НК GaN на ППС в зависимости от температуры подложки и номинального отношения потоков  $Ga/N_2^*$ , которая представлена на рис. 5

#### 4. Заключение

Исследованы особенности пространственно-селективного роста нано- и микрокристаллов GaN без использования методов литографии. Продемонстрированы возможности такого роста методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии на профилированных подложках с-сапфира с микроконусным профилем. Показано, что при использовании азот-обогащенных условий роста (с отношением потоков  $Ga/N_2^* = 0.25$ ) повышение селективности роста GaN наноколонн и уменьшение их диаметра до 35 нм (при высоте несколько сотен нм) достигается за счет проведения процесса в импульсном режиме при температуре подложки 780 °C с кратковременными отжигами, при которых температура подложки повышается на 25 °C. Однако в данном режиме роста зарождение наноколонн на вершинах микроконусов характеризуется вероятностью не более 50 %.

В противоположном случае металл (Ga)-обогащенных условий роста GaN с отношением потоков  $Ga/N_2^* = 1.5$  рост нанокристаллов определяется температурой подложки. В случае высоких значений (~800 °C) наблюдается формирование наноколонн GaN с диаметром в верх-

ней части ~30 нм, которые зарождаются почти на каждой вершине профилированной подложки. Важно, что вершины индивидуальных регулярных GaN наноколонн почти на 1 микрон выше уровня плоского слоя GaN, выращенного между микронусами. В случае более низких температур роста наблюдается рост сложных микро- и нанокристаллов с различной топологией поверхности и ориентацией полуполярных боковых стенок. При предельно низких температурах роста (~700 °C) наблюдается рост сложных GaN микрокристаллов, которые в верхней части имеют правильную форму гексагональных параллелепипедов с плоскими вершинами.

#### Заявленный вклад авторов

Семенов А. Н. – концепция исследования, написание текста, итоговые выводы, проведение эпитаксиальных ростов. Нечаев Д. В. – проведение эпитаксиальных ростов, обсуждение результатов и редактирование текста. Трошков С. И. – проведение измерений на растровом электронном микроскопе и обсуждение результатов, Жмерик В. Н. - идеи, развитие методологии, научное руководство и редактирование текста.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет известных финансовых конфликтов интересов или личных отношений, которые могли бы повлиять на работу, представленную в этой статье.

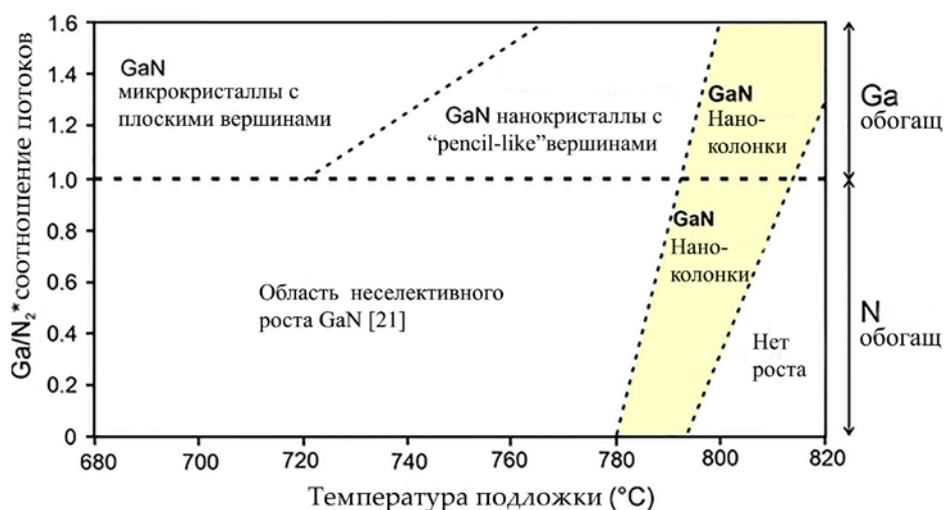


Рис. 5. Схематическая диаграмма различных режимов роста микро-, нано-кристаллов и наноколонн GaN, формируемых при ПА-МПЭ на ППС при различных значениях температуры подложки и отношения потоков  $Ga/N_2^*$

**Список литературы**

1. Li S., Waag A. GaN based nanorods for solid state lighting. *Journal of Applied Physics*. 2012;111: 071101. <https://doi.org/10.1063/1.3694674>
2. Mandl M., Wang X., Schimpke T., ... Strassburg M. Group III nitride core-shell nano- and microrods for optoelectronic applications. *Physica Status Solidi (RRL) – Rapid Research Letters*. 2013;7(10): 800–814. <https://doi.org/10.1002/pssr.201307250>
3. Zhao C.; Alfaraaj N.; Subedi R. C., ... Ooi B. S. III-nitride nanowires on unconventional substrates: From materials to optoelectronic device applications. *Progress in Quantum Electronics*. 2018;61: 1–31. <https://doi.org/10.1016/j.pquantelec.2018.07.001>
4. Chen F., Ji X., Lau S. P. Recent progress in group III-nitride nanostructures: from materials to applications. *Materials Science and Engineering: R: Reports*. 2020;142: 100578. <https://doi.org/10.1016/j.mserr.2020.100578>
5. Schimpke T., Mandl M., Stoll I., ... Strassburg M. Phosphor-converted white light from blue-emitting InGaN microrod LEDs. *Physica Status Solidi A*. 2016;213(6): 1577–1584. <https://doi.org/10.1002/pssa.201532904>
6. Sun H., Li X. Recent advances on III-nitride nanowire light emitters on foreign substrates – toward flexible photonics. *Physica Status Solidi A*. 2019;216: 1800420. <https://doi.org/10.1002/pssa.201800420>
7. Meier J., Bacher G. Progress and challenges of InGaN/GaN-based core-shell microrod LEDs. *Materials*. 2022;15: 1626. <https://doi.org/10.3390/ma15051626>
8. Adhikari S., Kremer F., Lysevych M., Jagadishae C., Tan H. H. Core-shell GaN/AlGaN nanowires grown by selective area epitaxy. *Nanoscale Horizons*. 2023;8: 530. <https://doi.org/10.1039/d2nh00500j>
9. Zhao S., Djavaid M., Mi Z. Surface emitting, high efficiency near-vacuum ultraviolet light source with aluminum nitride nanowires monolithically grown on silicon. *Nano Letters*. 2015;15: 7006–7009. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b03040>
10. Mi Z., Zhao S., Woo S. Y., ... Botton G. A. Molecular beam epitaxial growth and characterization of Al(Ga)N nanowire deep ultraviolet light emitting diodes and lasers. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2016;49: 364006. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/49/36/364006>
11. Djavaid M., Mi Z. Enhancing the light extraction efficiency of AlGaN deep ultraviolet light emitting diodes by using nanowire structures. *Applied Physics Letters*. 2016;108: 051102. <https://doi.org/10.1063/1.4941239>
12. Zhao C., Ebaid M., Zhang H., ... Ooi B. S. Quantified hole concentration in AlGaN nanowires for high-performance ultraviolet emitters. *Nanoscale*. 2018;10: 15980–15988. <https://doi.org/10.1039/C8NR02615G>
13. Holmes M. J., Choi K., Kako S., Arita M., Arakawa Y. Room-temperature triggered single photon emission from a III-nitride site-controlled nanowire quantum dot. *Nano Letters*. 2014;14(2): 982–986. <https://doi.org/10.1021/nl404400d>
14. Yamamoto T., Maekawa M., Imanishi Y., Ishizawa S., Nakaoka T., Kishino K. Photon correlation study of background suppressed single InGaN nanocolumns. *Japanese Journal of Applied Physics*. 2016;55: 04EK03. <https://doi.org/10.7567/JJAP.55.04EK03>
15. Mäntynen H., Anttu N., Sun Z., Lipsanen H. Single-photon sources with quantum dots in III–V nanowires. *Nanophotonics*. 2019;8(5): 747–769. <https://doi.org/10.1515/nanoph-2019-0007>
16. Arakawa Y., Holmes M. J. Progress in quantum-dot single photon sources for quantum information technologies: A broad spectrum overview. *Applied Physics Reviews*. 2020;7: 021309. <https://doi.org/10.1063/5.0010193>
17. Dai J., Liu B., Zhuang Z., ... Xie, Fabrication of AlGaN nanorods with different Al compositions for emission enhancement in UV range. *Nanotechnology*. 2017;28: 385205. <https://doi.org/10.1088/1361-6528/aa7ba4>
18. Nami M., Eller R. F., Okur S., Rishinaramangalam A. K., Liu S., Brener I., Feezell D. F. Tailoring the morphology and luminescence of GaN/InGaN core-shell nanowires using bottom-up selective-area epitaxy. *Nanotechnology*. 2017;28: 025202. <https://doi.org/10.1088/0957-4484/28/2/025202>
19. Hasan S. M. N., You W., Ghosh A., Sadaf S. Md., Arafin S. Selective area epitaxy of GaN nanostructures: MBE growth and morphological analysis. *Crystal Growth & Design*. 2023. <https://doi.org/10.1021/acs.cgd.2c01506>
20. Shubina T. V., Pozina G., Jmerik V. N., ... Ivanov S. V. III-nitride tunable cup-cavities supporting quasi whispering gallery modes from ultraviolet to infrared. *Scientific Reports*. 2015;5: 17970. <https://doi.org/10.1038/srep17970>
21. Jmerik V. N., Kuznetsova N. V., Nechaev D. V., ... Ivanov S. V. Selective area growth of N-polar GaN nanorods by plasma-assisted MBE on micro-cone-patterned c-sapphire substrates. *Journal of Crystal Growth*. 2017;477: 207–211. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.05.014>
22. Семенов А. Н., Нечаев Д. В., Трошков С. И., ... Иванов С. В. Особенности селективного роста наноколонн GaN на профилированных подложках с-сапфира различной геометрии. *Физика и техника полупроводников*. 2018;52(13): 1663–1667. <https://doi.org/10.21883/FTP.2018.13.46884.8894>

23. Kim J., Choi U., Pyeon J., So B., Nam O. Deep-ultraviolet AlGaN/AlN core-shell multiple quantum wells on AlN nanorods via lithography-free method. *Scientific Reports*. 2018;8: 935. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-19047-6>

24. Shen J., Yu Y., Wang J., Zheng Y., Gan Y., Li G. Insight into the Ga/In flux ratio and crystallographic plane dependence for MBE self-assembled growth of InGaN nanorods on patterned sapphire substrates. *Nanoscale*. 2020;12(6): 4018–4029. <https://doi.org/10.1039/c9nr09767h>

25. Ahn M. J., Jeong W. S., Shim K. Y., ... Byun D. Selective-area growth mechanism of GaN microrods on a plateau patterned substrate. *Materials*. 2023;16: 2462. <https://doi.org/10.3390/ma16062462>

26. Wang J., Guo L. W., Jia H. Q., ... Zhou J. M. Fabrication of patterned sapphire substrate by wet chemical etching for maskless lateral overgrowth of GaN. *Journal of the Electrochemical Society*. 2006;153(3): C182. <https://doi.org/10.1149/1.2163813>

27. Takano T., Mino T., Sakai J., Noguchi N., Tsubaki K., Hirayama H. Deep-ultraviolet light-emitting diodes with external quantum efficiency higher than 20% at 275 nm achieved by improving light-extraction efficiency. *Applied Physics Express*. 2017;10: 031002. <https://doi.org/10.7567/APEX.10.031002>

28. Tautz M., Weimar A., Graßl C., Welzel M., Díaz D. D. Anisotropy and mechanistic elucidation of wet-chemical gallium nitride etching at the atomic level. *Physica Status Solidi A*. 2020;217(21): 2000221. <https://doi.org/10.1002/pssa.202000221>

29. Sun Q., Yerino C. D., Leung B., Han J., Coltrin M. E. Understanding and controlling heteroepitaxy with the kinetic Wulff plot: A case study with GaN. *Journal of Applied Physics*. 2011;110: 053517. <https://doi.org/10.1063/1.3632073>

30. Li H., Geelhaar L., Riechert H., Draxl C. Computing equilibrium shapes of wurtzite crystals: the example of GaN. *Physical Review Letters*. 2015;115: 085503. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.115.085503>

31. Jmerik V. N., Nechaev D. V., Ivanov S. V. Kinetics of metal-rich PA molecular beam epitaxy of AlGaIn heterostructures for mid-UV photonics. In: *Molecular beam epitaxy (second edition)*. M. Henini (ed.). Elsevier; 2018. pp. 135–179. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-812136-8.00008-6>

32. Koblmüller G., Averbeck R., Riechert H., Pongratz P. Direct observation of different equilibrium Ga adlayer coverages and their desorption kinetics on GaN (0001) and (000-1) surfaces. *Physical Review B*. 2004;69: 035325. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.69.035325>

33. VanMil B. L., Guo H., Holbert L. J., ... Myers T. H. High temperature limitations for GaN growth by RF-plasma assisted molecular beam epitaxy: Effects of active nitrogen species, surface polarity, and excess Ga-overpressure. *Physica Status Solidi (c)*. 2005;2(7): 2174–2177. <https://doi.org/10.1002/pssc.200461573>

34. Fernández-Garrido S., Koblmüller G., Calleja E., Speck J. S. In situ GaN decomposition analysis by quadrupole mass spectrometry and reflection high-energy electron diffraction. *Journal of Applied Physics*. 2008;104: 033541. <https://doi.org/10.1063/1.2968442>

### Информация об авторах

Семенов Алексей Николаевич, к. ф.-м. н., с. н. с., ФТИ им. А. Ф. Иоффе (Санкт-Петербург, Российская Федерация).

<https://orcid.org/0000-0002-0719-0236>  
semenov@beam.ioffe.ru

Нечаев Дмитрий Валерьевич, к. ф.-м. н., с. н. с., ФТИ им. А. Ф. Иоффе (Санкт-Петербург, Российская Федерация).

<https://orcid.org/0000-0003-4420-8420>  
nechayev@mail.ioffe.ru

Трошков Сергей Иванович, к. ф.-м. н., с. н. с., ФТИ им. А. Ф. Иоффе (Санкт-Петербург, Российская Федерация).

<https://orcid.org/0000-0002-3307-6226>  
S.Troshkov@mail.ioffe.ru

Березина Дарья Сергеевна, аспирант, м. н. с., ФТИ им. А. Ф. Иоффе (Санкт-Петербург, Российская Федерация).

<https://orcid.org/0000-0001-9190-1768>  
Dariya.Burenina@mail.ioffe.ru

Аббас Арва Сауд, Ph.D., исследователь, Центр науки и технологий короля Абдулазиза (Эр-Риад, Саудовская Аравия).

arwasaudabdullah@gmail.com

Жмерик Валентин Николаевич, д. ф.-м. н., гл. н. с., ФТИ им. А. Ф. Иоффе (Санкт-Петербург, Российская Федерация).

<https://orcid.org/0000-0001-8759-7273>  
jmerik@pls.ioffe.ru

Поступила в редакцию 10.10.2023; одобрена после рецензирования 13.10.2023; принята к публикации 16.10.2023; опубликована онлайн 25.12.2023.