

A study on growing of bulk AlN single crystals grown having a (011) growth face of by PVT method

Seung-Min Kang[†]

Department of Advanced Science and Engineering, Hanseo, University, Seosan 356-820, Korea

(Received January 30, 2015)

(Revised February 9, 2015)

(Accepted February 13, 2015)

Abstract AlN Single Crystal were grown by PVT (Physical vapor transport) method on bulk seed. It was performed by high-frequency induction-heating coil. AlN source powder was loaded at bottom side of the carbon crucible and the crystal seed was loaded at the upper side of the crucible. The temperature conditions of the growth was varied 2000~2100°C and the surrounding pressure was 1×10^{-1} ~200 Torr. And the hot-zone of the heating position was controlled elaborately according to growth. The 17 mm-diameter, 7 mm-thickness AlN single crystal is obtained for about 600 hours growing. It was recognized that the growth direction of as grown crystal was R[011] by the Laue X-Ray camera measurement.

Key words AlN, Single crystals, PVT (Physical Vapor Transport), Growing

PVT법을 이용한 (011)면으로 성장된 AlN 단결정 성장에 관한 연구

강승민[†]

한서대학교 신소재공학과, 서산, 356-820

(2015년 1월 30일 접수)

(2015년 2월 9일 심사완료)

(2015년 2월 13일 게재확정)

요약 PVT(Physical vapor transport)법으로 벌크형 종자 결정을 이용하여 AlN 단결정을 성장 시켰다. 성장과정은 고주파 유도 가열 코일을 이용한 방법으로 진행되었다. 카본 도가니의 하단에 원료 분말을 장입하고 종자 결정은 도가니의 상부에 부착하였다. 성장 조건으로 온도는 2000~2100°C 사이에서 이루어 졌으며 챔버내 압은 1×10^{-1} ~200 Torr로 유지하였다. 또한 가열 위치를 결정짓는 hot-zone 조절이 성장의 시간이 진행됨에 따라 수정되었다. 이러한 조건하에 약 600시간 성장시킨 결과로 장축 직경 17 mm 두께 7mm의 AlN 단결정이 얻어졌으며, Laue X-Ray 장치를 이용하여 성장된 결정의 방향을 조사한 결과 R방향[011]으로 성장 되었음을 알 수 있었다.

1. 서 론

최근 LED의 발전과 함께 LED 제조를 위한 화합물 단결정에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다[1-4]. 그 중 AlN 단결정은 밴드갭이 6.2 eV로 높아서 초단파장의 자외선을 방출할 수 있는 자외선 LED의 제조가 가능한 결정이다. 또한, AlN을 기반으로 하는 자외선 LED는 기존 LED 램프의 단점인 효율, 밝기 등 성능을 개선할 수 있는 유일한 대안으로 알려져 있어 이에 대한 연구의 필요성이

크다. 본 연구에서는 크기 2~3 mm 크기의 종자결정을 성장한 후 이를 이용하여 육각기둥 형태의 단결정 형태를 갖는 AlN 단결정을 성장시킨 결과를 보고하고자 한다.

2. 실험

PVT법을 이용하여 AlN 단결정을 성장 시켰으며[5-7] 내경 100 mm, 높이 125 mm의 상반부, 하반부로 나뉘는 그라파이트 재질의 도가니를 준비하였다. 또한 도가니의 발열된 열이 외부로 방출되는 것을 막아 주기 위해 그라파이트 재질 소프트펠트를 이용하여 감싸준 뒤 고주파 발열로에 장입하였다. 이때 도가니와 소프트펠트의 사전

[†]Corresponding author
Tel: +82-41-660-1446
Fax: +82-41-688-1343
E-mail: smkang@hanseo.ac.kr

처리를 통하여 실험 중 급격한 성능 변화가 발생하지 않도록 준비하였다. 도가니의 안쪽에는 아래쪽에 AlN 분말을 장입하여 증발된 AlN 가스들이 상부로 분산될 수 있도록 하였으며, 사용된 AlN 분말은 일본 Tokuyama 사의 제품으로 평균 직경 1 μm 정도의 것으로 순도 99.95 % 급이 사용되었다. 도가니의 상단에는 1~2 mm급의 미소 결정이 성장에 사용될 종자결정으로 이용되었으며 이 결정의 기본 위치를 유지하도록 그라파이트 치구를 이용하여 물리적인 방법으로 고정시켰다.

이렇게 준비된 도가니의 셋트를 고주파 유도 가열로내의 그라파이트 지지봉위에 반혀놓고 유도 코일 중앙에 위치시켰으며 성장중 압력 유지 및 분위기의 설정을 위해 유도 코일과 도가니 셋트 사이에 석영재질의 관을 이용하여 밀봉시켰다. 고주파 유도 가열로는 도가니 내부까지 승온이 될수 있도록 주파수 30 khz의 주파수를 발진하는 장치를 사용하였다.

성장 온도는 진행중 2000~2100°C로 변경되는 조건을 사용하였고, 최초 온도 상승시 사용된 AlN 분말이 하소 및 소결이 될 수 있도록 개발된 프로그램을 사용하였다. 또한 성장중의 챔버 내부 압력은 1×10^{-1} ~200 Torr로 유지할 수 있도록 압력 조절기를 사용하였으며 항상 불활성의 N₂ 가스를 100 sccm 투입시켜 내부의 온도나 압력의 급격한 변화가 발생하지 않도록 성장시켰다. 도가니 내의 AlN 분말의 장입 한계로 인해 1회 120시간의 성장을 시키는 방식으로 동일한 방식을 반복하여 약 600 시간 동안 성장하였다. 성장시킨 결정은 따로 분리하여 Laue X-Ray 장치를 통해 결정의 방향을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 AlN 단결정 성장에 종자 결정으로 사용된

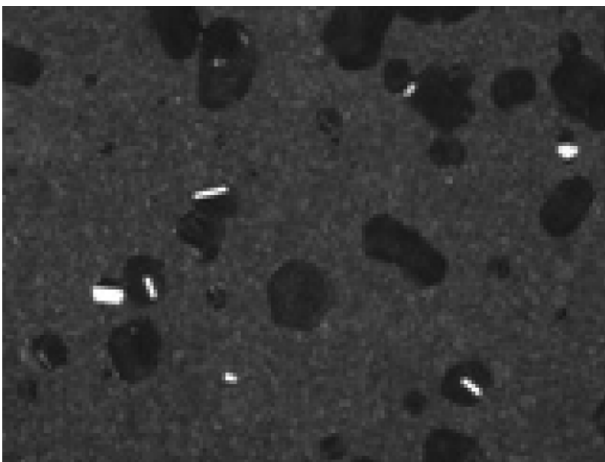


Fig. 1. Seed crystals for bulk AlN crystals having a size under 1 mm.

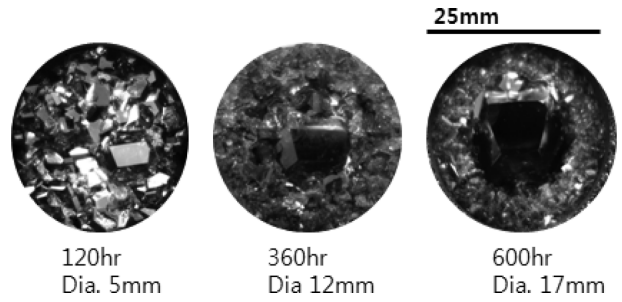


Fig. 2. Crystal diameter was increased with the total growth time.

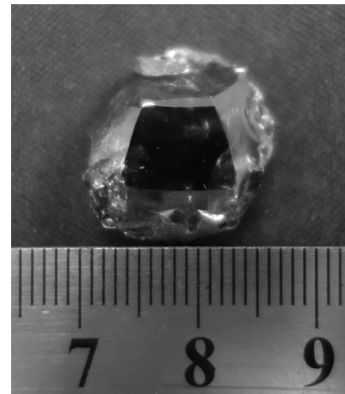


Fig. 3. As-grown AlN single crystal.

단결정을 보였다.

본 실험을 통해 성장된 단결정은 Fig. 2에 성장 과정 중의 크기의 변화 및 성장된 AlN 단결정을 나타내었다. Fig. 3에서 보이듯이 직경 17 mm의 결정으로 성장되었으며 결정의 방향을 잘 알 수 있을 정도로 facet이 발달한 것이 보여진다. 결정의 성장속도는 최대 약 50 μm/hr 정도의 속도였으며, (011)면의 facet 이 성장표면으로 형성되면서 성장되었다. (011)면은 결정의 성장과 함께 면의 크기도 성장하는 추세로 성장되었으며, 이를 통해 성장된 단결정의 성장 거동이 체적 성장하였음을 알 수 있었다.

성장된 결정의 방향을 명확히 하기 위해 Laue X-ray 장치를 통해 각 facet별로 면지수를 확인하였다. 사용된 장치는 Phonic Science사의 GENIV Laue Turnkey System (40 kV-20 watt급)을 사용하여 측정하였으며 그 결과 Fig. 4과 같은 패턴을 얻었으며 각각 C축의 면과 R축의 면임을 확인할 수 있다. 결정면에 따른 facet 면에 대하여 Laue pattern을 얻어내었고, 결정의 형성 면에 대한 확인을 하였다.

또한 Fig. 5에서 보듯이 성장된 단결정을 각각의 두께 0.7 mm가 되도록 절단한 결과 6조각의 10 mm 크기의 소형 조각을 얻었다. 성장 중 결정 내부에 탄소의 혼입이 관찰되었으며, 이는 결정의 성장 초기성장시 성장면의 표면에 탄소층이 혼입된 것으로 사료된다.

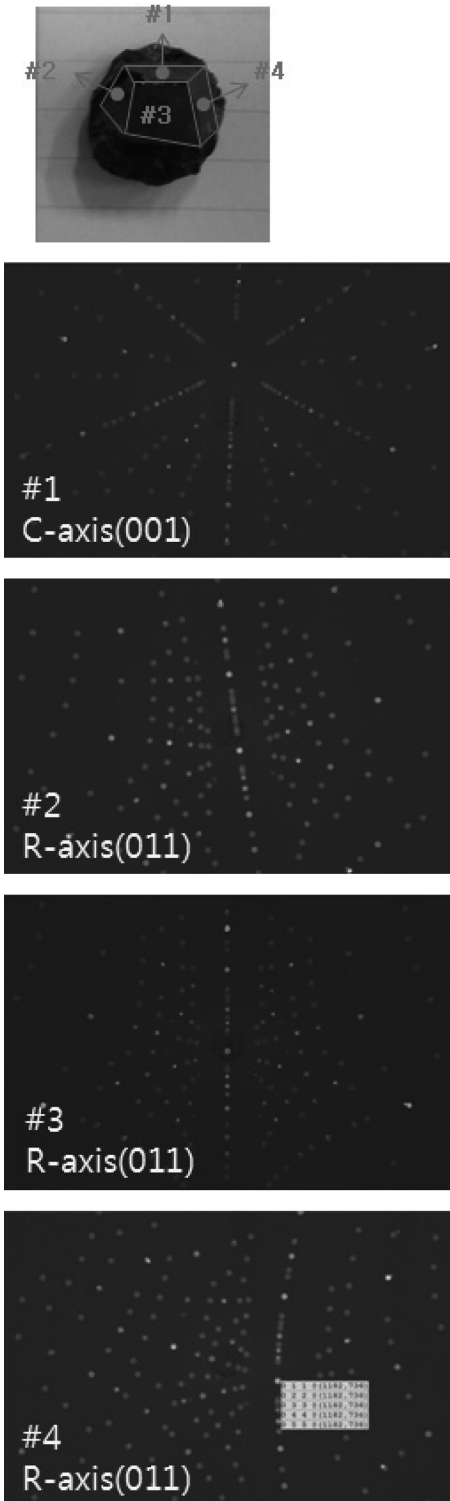


Fig. 4. Laue pattern according to as-grown AlN single crystal facet plane.

4. 결 론

무종자정 성장을 통하여 그래파이트 판에 성장된 AlN 단결정을 종자 결정으로 사용하여 AlN 벌크 단결정을

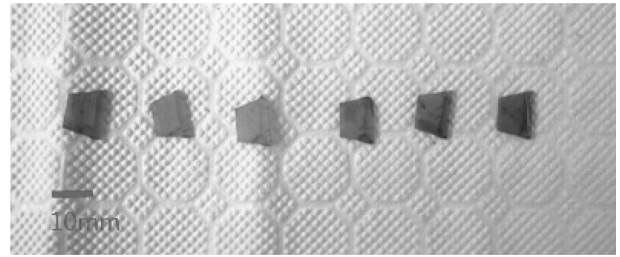


Fig. 5. AlN single crystal pieces which was sliced from as grown crystal.

성장하였다. 성장된 결정의 표면은 (011)면의 facet이 발달하면서 안정된 성장 거동을 보이며 성장되었으며, 용이성장축으로 해석될 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 산업통상부에서 주관하는 전략적핵심소재기술개발사업(과제번호 : 10043791)으로 수행되었습니다.

References

- [1] D. Sichea, D. Gogovaa, S. Lehmann, T. Fiziaa, R. Fornaria, M. Andraschb, A. Pipab and J. Ehlbeck, "PVT growth of GaN bulk crystals", J. Cryst. Growth 318 (2011) 406.
- [2] F. Krzyzewski, "4H-SiC surface structure transitions during crystal growth following bunching in a fast sublimation process", J. Cryst. Growth 401 (2014) 511.
- [3] T. Baker, A. Mayo, Z. Veisi, P. Lu and J. Schmitt, "Hydride vapor phase epitaxy of AlN using a high temperature hot-wall reactor", J. Cryst. Growth 403 (2014) 29.
- [4] E.N. Mokov, O.V. Avdeev, I.S. Barash, T.Yu. Cheme-kova, A.D. Poenkov, A.S. Segal, A.A. Wolfson, Yu.N. Makarov, M.G. Ramm and H. Heleva, "Sublimation growth of AlN bulk crystal in Ta crucible", J. Cryst. Growth 281 (2005) 93.
- [5] S.M. Kang, "Growth of AlN crystals by the sublimation process", J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 18 (2008) 68.
- [6] S.M. Kang, "Morphological study on non-seeded grown AlN single crystals", J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 22 (2012) 265.
- [7] S.M. Kang, "A study on growth of AlN single crystals", J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 23 (2013) 279.