

A study on the crystallite growth behavior in AlN crystal grown by PVT (Physical Vapor Transport) method

Seung-Min Kang[†]

International Graduate School of Design Convergence, Hanseo University, Seosan 31962, Korea

(Received May 27, 2016)

(Revised June 9, 2016)

(Accepted June 17, 2016)

Abstract It was observed that the single grain of crystallite growth behavior in AlN (Aluminum Nitride) single crystal growth by PVT (Physical Vapor Transport) method. The single grain of AlN was grown in sequent experiments and adjacent crystallites were joined together after small grain was grown. The sequential results of those grains observed by stereoscopic microscope were reported.

Key words AlN, Single crystals, Crystallite, PVT (Physical Vapor Transport), Growth temperature

PVT(Physical Vapor Transport) 법으로 AlN 결정 성장에서 결정립의 성장 거동에 관한 연구

강승민[†]

한서대학교 국제디자인융합전문대학원, 서산, 31962

(2016년 5월 27일 접수)

(2016년 6월 9일 심사완료)

(2016년 6월 17일 게재확정)

요약 AlN 결정을 PVT(물리 기상 이동법, Physical Vapor Transport) 법으로 성장함에 있어 결정립의 성장 거동을 관찰하였다. 작은 AlN 결정립이 성장한 이후 결정립들은 이웃한 결정립과 합쳐지면서 성장하는 거동을 보였다. 이를 실체현미경을 이용하여 관찰한 결과를 보고하고자 한다.

1. 서론

최근 AlN 단결정은 단파장의 자외선 LED(200 nm~350 nm)를 제조할 수 있는 유일한 LED용 단결정 소재로 알려져 있으나 아직 상용화되지 못하고 있기 때문에 이에 대한 개발의 필요성이 크다. 그 이유는 AlN 단결정의 성장에 있어 결정의 대형화 기술과 고품질화 등 해결해야 될 기술이 많기 때문이다. 또한 기상으로부터 결정을 성장하는 공정과 용액으로부터 성장하는 공정은 성장기구가 서로 다르며, 용액으로부터의 성장기구에서 성장계면의 상태가 기상으로부터의 성장기구에서 나타나는 성장계면의 상태보다 안정적인 에너지 분포를 가지기 때문에 결정의 품질과 대형화 등이 매우 유리하지만, AlN 단결정은

용액성장이 아닌 기상성장으로만 성장이 가능하기 때문에 성장계면에서의 성장거동에 대한 연구가 매우 필요하다.

본 논문에서는 기상으로부터의 성장기구에서 종자결정 표면과 기상과의 성장계면에서 형성되는 핵들이 성장하면서 하나의 단결정화가 되는 과정에 대하여 알아보고자 하였으며, 성장계면에서 성장된 결정립들이 하나의 커다란 결정립으로 되는 과정을 현미경 관찰을 통하여 고찰하여 보았으며, 이는 기상으로부터 성장하는 결정 성장 공정에서 나타나는 전형적인 성장거동이라고 말할 수 있기 때문에 AlN 단결정의 성장 초기모습을 현미경으로 관찰하여 얻어진 결과로부터 이러한 성장거동에 대하여 규명해보고자 하였다.

AlN 단결정은 PVT 법으로 성장하며, 이전에 성장 속도가 약 20~100 $\mu\text{m/hr}$ 정도의 결과를 얻을 수 있었던 보고를 한 바 있다[1-3]. 이러한 성장 속도는 SiC 단결정의 경우보다는 다소 느리게 성장되어지는 결과를 얻어

[†]Corresponding author
E-mail: smkang@hanseo.ac.kr

왔다[4, 5]. 이를 개선하고자 하는 과정에서 AlN 결정립들의 성장 거동을 현미경을 통하여 관찰하여 고찰한 결과 결정립들이 서로 성장하면서 동일 성장 방향을 갖는 결정립들이 서로 합쳐지는 현상을 보이면서 성장하고 있음을 알게 되었고, 본 연구에서는 이에 대하여 고찰한 결과를 보고하고자 한다.

2. 실험

본 실험에서는 AlN 단결정을 성장하는데 있어 고상의 AlN 원료를 사용하여 도가니에 충전하여 성장용 원료로 사용하였으며, 일본 Tokuyama 사에서 제조한 AlN 분말(순도: 99.95%, D_{50} : $< 1.0 \mu\text{m}$) 원료를 사용하였다. 그라 파이트 도가니에 충전량을 충전하여 일정 시간 하소와 소결이 진행되도록 결정 성장 온도 및 압력 조절 프로그램을 개발하여 적용하였다. 성장 압력은 질소(N_2)가스를 20~100 sccm 유량으로 조절하여 주입하였고, 1~500 torr 범위에서 제어하였다. 석영으로 제작되어진 챔버 내에 장착된 도가니는 고주파 유도 가열 코일(Radio Frequency Induction Heating Coil)을 이용하여 가열하였다.

본 연구에서 결정의 성장 실험은 2010(성장시간 3시간), 2010(성장시간 6시간), 2020(성장시간 4시간), 2030°C(성장시간 4시간)의 조건으로 실험을 행하였고, 성장한 결과를 실제현미경으로 관찰하였다. 결정의 성장 온도는 하부온도를 기준으로 변화하여 주었으며, 결정의 성장 결과는 순차적으로 진행하여 성장된 결정립들의 동일한 부분을 관찰하고, 성장 전의 결과와 성장 후의 성장 거동과의 비교 관찰을 통하여 고찰해 보고자 한다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1에 성장된 AlN 결정립 상의 모습을 보였다. 결정 성장 온도는 2010°C였고, 성장 시간은 3시간 성장한 결과이다. 종자 결정으로 c면을 사용하여 성장하였으며, 증착된 결정상의 모양은 6각형의 형태로 성장되었고, 결정립들(crystallites)의 성장된 방위는 모두 같은 방향으로 배열되어 성장되었음을 알 수 있었다. 6각형의 형태로 성장하는 결정립들은 일정 크기로 성장되어 서로 중첩되어지게 될 것으로 예상되었으나, 본 사진을 통하여 따로따로 성장된 결정립들이 서로서로 결합되어 성장하게 됨을 보여주고 있었다. 이를 알아보기 위하여 지속적으로 실험을 수행하여 보았다. Fig. 2는 Fig. 1의 결과를 다시 재성장하여 얻은 결과의 사진이다, 성장 온도는 같은 온도인 2010°C이었으며 성장 시간은 6시간 성장한 결과를 보인 것이다. 화살표 방향으로 각각의 결정립들은 성장한 결과를 보였

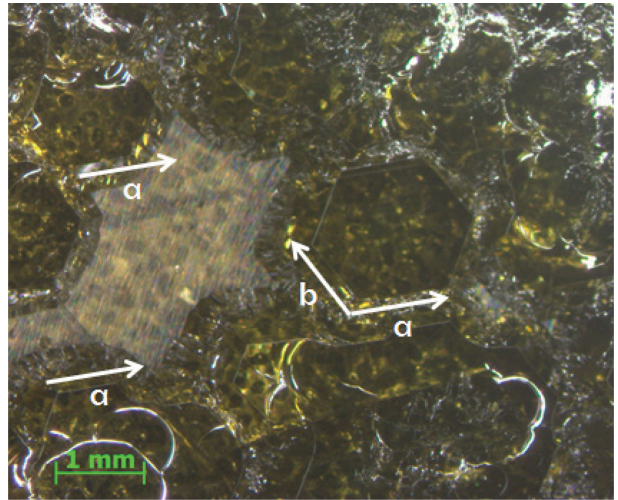


Fig. 1. Stereo-micrograph of as-grown AlN crystallites at the temperature of 2010°C for 3 hrs. The arrows represent the crystal axis a and b.

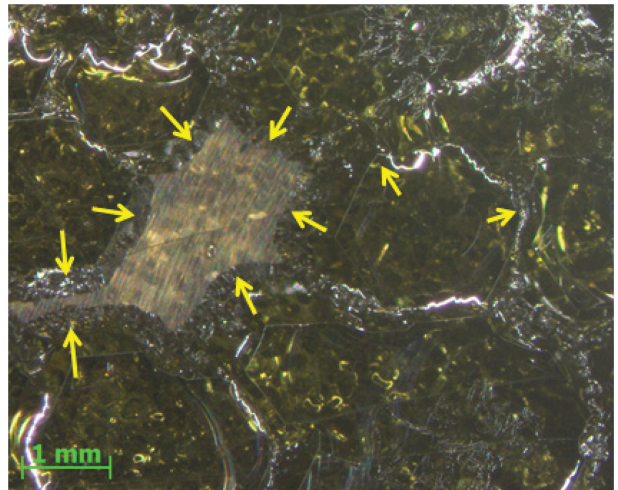


Fig. 2. Stereo-micrograph of as-grown AlN crystallites at the temperature of 2010°C for 6 hrs. Crystallites were grown with a rate of 20°C/hr along the directions of arrows.

며, Fig. 2의 좌측 마주보는 화살표부분은 서로 성장하여 마주 닿으려고 하는 거동을 보임을 알 수 있었다.

Fig. 3은 이와 같은 결정립들의 성장 거동이 더 잘 나타나 있는 사진으로서, 마주 향하고 있는 화살표가 마주 향하고 있는 방향으로 서로 맞닿게 되는 형상을 보이고 있다.

Fig. 2의 같은 부분은 서로 닿아있을 정도로 성장하였다. 'a' 부분은 이미 2개의 결정립이 서로 결합하여 성장하고 있어 Fig. 3의 빨간색 화살표 부분은 Fig. 2의 결정립 모습보다 많이 서로 결합되어 성장되었음을 알 수 있다. 성장온도를 더 높일 경우 증발량의 증가와 함께 결정립의 성장 속도와 성장 거동이 변화될 것으로 예상하여 성장 온도를 다시 10°C를 올려서 성장을 행하였다.

Fig. 4의 사진은 Fig. 3의 성장 결정상에 다시 성장 실

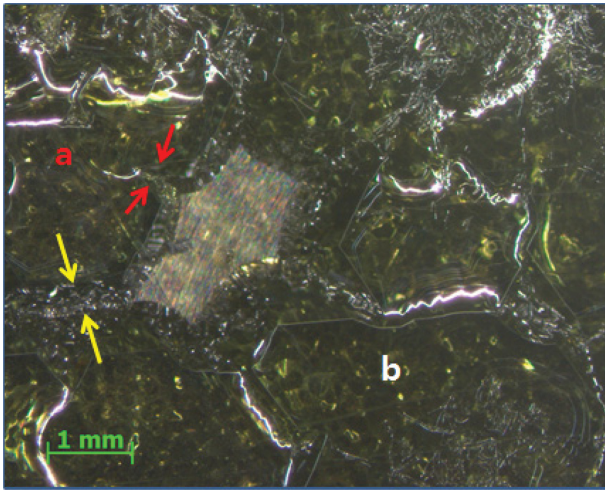


Fig. 3. Stereo-micrograph of as-grown AlN crystallites at the temperature of 2020°C for 4 hrs. The 'a' represents the encountered region of two crystallites and the 'b' represents a crystallites grown without encounter. The arrows represent the joint areas of crystallites at the same position of Fig. 1 and Fig. 2.

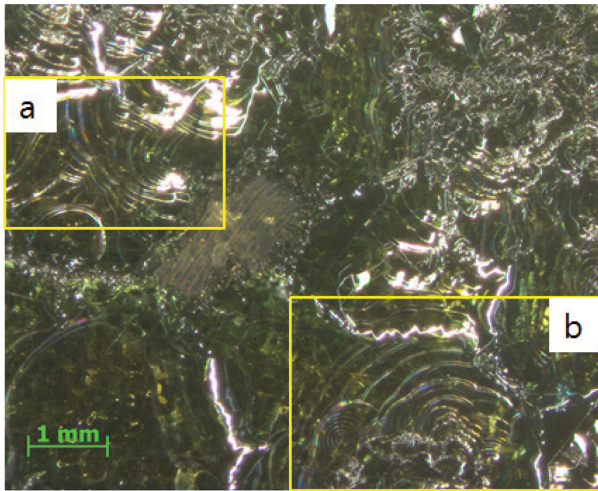


Fig. 4. Stereo-micrograph of as-grown AlN crystallites at the temperature of 2030°C for 4 hrs. 'a' and 'b' represent the joint region of the crystallites and the growth steps.

험을 행한 결과를 보인 것이다. 성장 온도를 2030°C로 하고, 성장 시간은 4시간 동안 성장한 결과이다. 성장 온도가 2030°C가 됨으로서 원료로부터의 증발량의 증가에 따라 결정립은 성장 속도가 큰 상태로 성장하였으며, 이는 Fig. 5에서와 같이 step 성장 거동(사진에서 원형 또는 직선의 줄무늬 모양이 보이는데, 이러한 모양은 결정이 성장할 때 종방향 보다는 측면 방향으로의 성장이 우세하게 성장되는 거동을 말함)을 보이면서 성장하게 됨을 알았다. 성장 계면에 형성된 온도구배는 성장 속도를 지배하는 직접적인 변수가 되는데, 성장 계면에서 온도구배가 일정하게 유지되고 있다면 성장되는 결정의 표면은 Fig. 5와 같이 성장 step을 형성하면서 성장하게 되며,

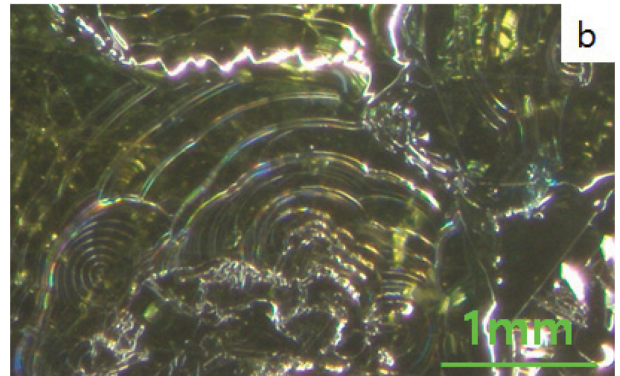
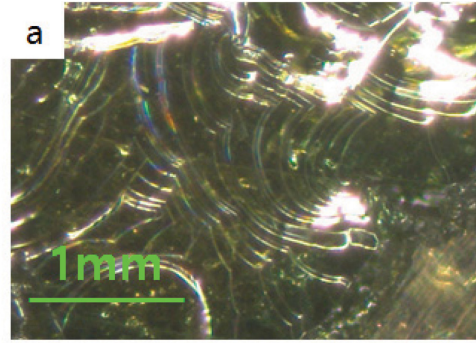


Fig. 5. Stereo-micrograph of magnified part 'a' and 'b' in the Fig. 4. The growth steps were observed and the interval of each steps were spreaded out uniformly.

원료로부터 공급되는 기체상의 분자나 원자들의 포화도가 크게 되면 결정의 길이 방향으로의 성장이 우선되는 2차원적인 성장 거동을 보이게 됨을 알 수 있었다.

4. 결 론

AlN 결정을 종자결정으로 사용하여 결정립의 성장 상태와 거동을 실체현미경을 이용하여 관찰하여 보았다. 성장된 결정립들은 먼저 섬(island)처럼 일정 거리를 띄고 성장하였지만 지속적으로 성장을 시도하여 성장이 계속되었을 때의 결과를 관찰한 결과 성장된 결정립들이 계속 성장하여 서로 닿게 되고 성장된 결정립들의 방위는 모두 같기 때문에 결국에는 서로 배열을 같이 하면서 결정립들이 결합되거나, 합쳐지게 됨을 알게 되었다. 또한, 성장 온도가 상승하여 일정 온도 이상이 되면, 원료의 증발량의 증가로 인하여 AlN 단결정의 결정립의 성장 속도가 증가하게 되는 결과를 얻었으며, 이는 step 성장을 하고 있는 모습으로부터 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부에서 주관하는 전략적핵심소

재기술개발사업으로 수행되었습니다(과제번호 10043791, “광전소자 및 전력소자용 AlN 단결정 제조 기술”).

References

- [1] S.M. Kang, “Growth of AlN crystals by the sublimation process”, J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 18 (2008) 68.
- [2] S.M. Kang, “Morphological study on non-seeded grown AlN single crystals”, J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 22 (2012) 265.
- [3] S.M. Kang, “A study on the growth of AlN single crystals”, J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 23 (2013) 279.
- [4] G.P. Yin and S.M. Kang, “Dependance of hot-zone position on AlN single crystal growth by PVT method”, J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 26 (2016) 84.
- [5] M. Miyanaga, N. Mizuhara, S. Fujiwara, M Shimazu, H. Nakahata and T. Kawase, “Evaluation of AlN single crystal grown by sublimation method”, J. Cryst. Growth 300 (2007) 45.