

## A study on the repeatability of large size of AlN single crystal growth

Seung-Min Kang<sup>†</sup>

Dept. of Design Engineering Convergence, Hanseo University, Seosan 31962, Korea

(Received July 24, 2018)

(Revised August 13, 2018)

(Accepted August 14, 2018)

**Abstract** A large single crystal of AlN was grown by PVT (Physical Vapor Transport) method. The AlN crystal shaped hexagonal of the diameter of about 46 mm and the thickness of 7.6 mm was grown using 33 mm seed crystal which was grown and made by ourselves. We tried to find out repeatable growth possibility for AlN crystal growth and then to evaluate the repeatability of the growth condition of the temperature of 1950~2100°C and the ambient pressure of 0.1~1 atm.

**Key words** Repeatability, AlN crystal, Crystal growth, PVT method, Large crystal

## AlN 단결정 성장에 대한 반복 성장성에 관한 연구

강승민<sup>†</sup>

한서대학교 국제디자인융합전문대학원, 서산, 31962

(2018년 7월 24일 접수)

(2018년 8월 13일 심사완료)

(2018년 8월 14일 게재확정)

**요약** 물리기상이동법(Physical Vapor Transport(PVT) method)을 적용하여 질화알루미늄 단결정을 성장하였다. 자체적으로 성장하고 제조한 직경 33 mm 크기의 종자결정을 사용하여 직경 46 mm, 길이 7.6 mm 크기의 벌크단결정을 성장하였으며, 성장 온도는 1950~2100°C, 성장 압력은 0.1~1 atm의 범위에서 조절하여 반복 성장을 통하여 성장한 결과를 보고하고자 한다.

### 1. 서론

AlN 단결정은 II-VI족의 화합물 단결정 소재로서, 밴드갭이 6.2 eV로 단파장의 UV-C 자외선을 발광할 수 있는 LED(Light Emitting Diode)용 기판 소재로서 잠재력이 크다[1, 2]. 지금까지 알려진 소재들 중 UV LED를 제조할 수 있는 가능성이 매우 높고, 박막결정의 기판을 사용하여 광출력이 수 백 mW의 UV LED 소자가 개발되고 있는 중이다. 그러나, 살균 또는 정화를 위한 응용 분야에 적용하기 위해서는 고출력의 소자가 필요하며, 이를 위해서는 수백  $\mu\text{m}$  두께의 고품질의 단결정 기판이 필요하고 이를 제조하기 위하여 많은 노력이 기울여지고 있다[3-5].

본 논문에서는 대형의 단결정의 성장하기 위하여 반복적으로 성장을 시도함으로써 대형의 단결정을 성장할 수

있는 가능성을 평가해 보고자 하였으며, 수회에 걸쳐 성장된 육각형의 형태를 가진 AlN 단결정을 성장한 결과를 보고하고자 한다.

### 2. 실험

종자결정으로 사용하기 위한 AlN 단결정을 준비하였으며 가장자리의 다결정상을 제거하기 위하여 육각형 형태로 절단한 종자결정을 제조하였다. 종자결정은 장축 길이 33  $\times$  단축 길이 30  $\times$  두께 2 mm의 사양으로 절단하여 제조하였으며, 제조된 종자결정 면은 c면의 기준으로 하였고, 그라파이트 판에 부착된 형태였다.

원료로서 AlN(Tokuyama, 3.5 N, D 50  $\approx$  1  $\mu\text{m}$ ) 분말을 매 실험에 동일한 양이 되도록 칭량하여 충전하였으며, 성장 조건을 제어하기 위하여 예비실험 단계를 행하였으며, 예비 실험 조건과 성장 조건의 일치성을 평가하며 성장을 진행하였다. 성장온도는 1950°C~2100°C의 조

<sup>†</sup>Corresponding author  
E-mail: smkang@hanseo.ac.kr

건에서 조절하였으며, 성장 압력은 0.1~1 기압의 범위에서 조절하였다.

성장 실험에 있어서는 성장된 결정을 절단 또는 연마 가공 등 가공의 공정을 수행하지 않고 종자 결정으로 사용하여 성장을 시도하였다. 이렇게 수행하는 반복 성장 실험을 수행하였다. 또한 성장 실험 전단계에서 예비 실험을 통하여 성장 조건을 설정하고 설정된 성장 조건을 적용하여 결정 성장을 수행하였다. 성장 시간은 매 실험 시 72시간을 수행하였고 총 5회의 성장 실험을 행하였다.

### 3. 결과 및 고찰

AlN 결정의 구조를 Fig. 1에 나타내었다. 6각형의 대칭과 거울면의 가지고 있으며, c 축을 따라 glide를 가지는 구조를 갖는다. 이러한 구조를 반영하여 성장되는 결정상은 c 면이 6 각형인 구조를 가지며, facet 면이 잘 발달하면서 성장하는 거동을 보인다.

이러한 거동으로 성장된 결정은 Fig. 2에 나타내었으며, c 면 상에 잘 발달된 성장 step이 관찰되었다. 이러한 성장 거동을 보이는 AlN 단결정은 성장 조건의 설정이 양호하게 설정된 결과에서 나타나게 된다. Fig. 2에 보인 결정의 크기는 약 0.7 mm 정도의 직경을 갖는데, AlN 결정의 경우 성장 온도에 따라 성장되는 양상이 다르게 나타나게 되며, 성장온도가 낮을 경우에는 성장되는 결정상이 다른 결과가 나타나게 되기 때문에 성장온도를 제어하는 것이 매우 중요하다는 것을 연구를 통하여 알게 되었다[2]. 따라서 성장 온도를 적합하게 조절하여 성장 변수와 조건을 설정하였으며, 설정된 성장 조

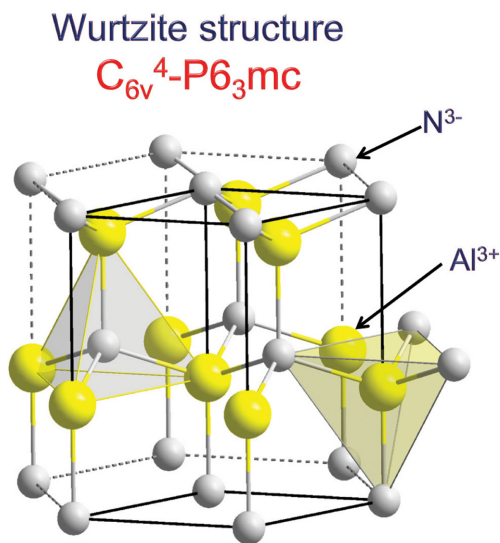


Fig. 1. Schematic structure of AlN crystal.

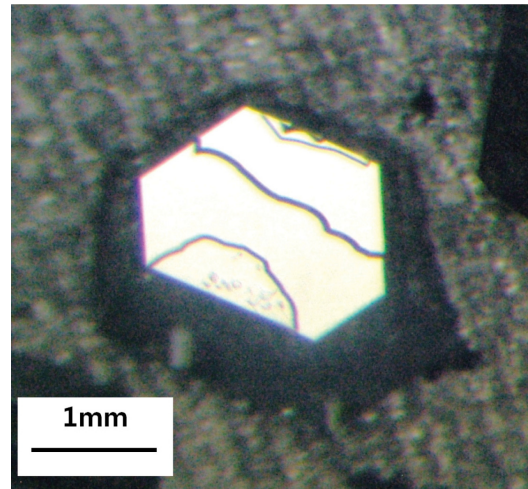


Fig. 2. Photograph of AlN single crystal grown by hexagonal shape.

건을 통하여 반복 성장을 가능하도록 하였다.

본 연구에서는 이러한 성장거동에 주목하여 종자결정을 육각형의 형태로 제조하여 성장하고자 하였다. Fig. 3에 종자결정에 사용된 결정을 보였다. 대각선의 직경은 약 33 mm이었으며, 이 결정의 최상면을 두께 0.7 mm로 절단하여 종자결정으로 하였고, 절단된 종자결정을 Fig. 3의 (c)에 보였다.

Fig. 4에 반복적으로 성장된 결정의 사진을 나타내었

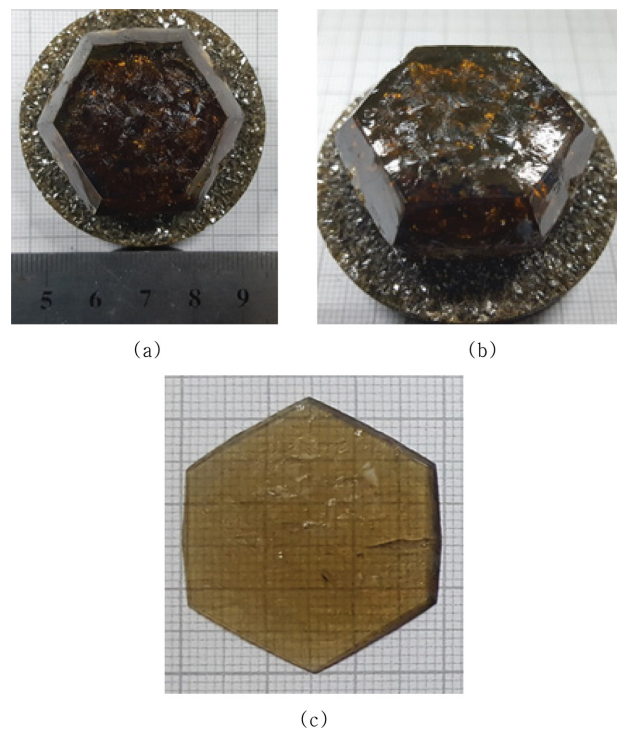


Fig. 3. Photographs of a AlN boule used for seed crystal. (a) Top-view image, (b) front view image and (c) sliced AlN seed crystal.

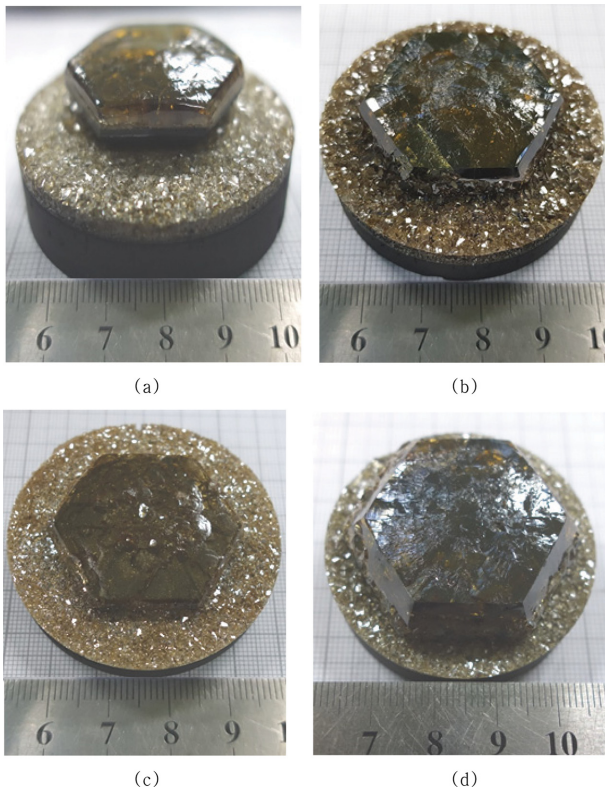


Fig. 4. Photographs of as grown crystals of AlN. A dimension of (a)  $37 \times 32$  mm, (b)  $39 \times 34$  mm, (c)  $42 \times 37$  mm and (d)  $46 \times 41$  mm are represented respectively.

다. 성장시간은 동일하게 72시간 동안 성장된 결정으로 대형의 단결정을 성장할 수 있는 성장 조건을 확립할 수 있었다. 이를 통하여 반복성의 결과를 알 수 있었으며,

Fig. 4의 (d)의 결과는 길이 7.6 mm로서 4회에 걸쳐 약 5 mm의 두께 성장을 하였다. 또한 대각선의 길이 차이는 그대로 동일하게 유지된 것으로 보아 6개의 방향에서 동일하게 성장이 일어났음을 알 수 있었다. 이를 통하여 성장 공간에서의 온도구배가 균일성과 대칭성을 유지하고 있음을 알 수 있었으며, 성장 속도에 있어서도 동일한 성장 속도를 나타내고 있음을 알 수 있었다. 또한 성장된 결정의 측면은 약간 기울어진 경사도를 유지하고 성장되는 거동을 보인다[6]. 이는 AlN 단결정의 단위정의 형태가 반영된 것으로 사료되며 이러한 거동은 직경의 성장에 있어 결정의 전체적인 성장과 함께 성장되는 양상이 있기 때문으로, 성장 공간에서의 온도구배의 설정에 따라 나타나는 결과로 생각할 수 있으며, 이를 기초로 성장 공간의 온도구배와 핫존의 설정에 기인되는 것으로 사료된다[7, 8].

Fig. 5와 Fig. 6에 AlN 결정에 대하여 이중결정 X선 회절 분석(DCXRD)에 의한 결정성 분석을 행한 결과를 나타내었다. Fig. 5는 종자결정으로 성장에 사용된 결정의 분석 결과로서 Fig. 3(d)의 결정을 측정된 것이다. FWHM(Full Width of Half Maximum) 값은 241.2 arcsec였으며, Fig. 4의 (d)의 결정을 측정된 결과를 보인 Fig. 6의 결정을 측정된 결과 FWHM(Full Width of Half Maximum) 값은 198 arcsec였다. Rocking curve에서 관찰해 볼 때 피크의 형태가 여러 방위의 결과에서 얻어진 결과와 같은 2차 피크의 생성을 볼 수 있는데, 이는 결정의 표면에 형성된 결정 결함[9]으로서 도메인(domain)의 방향이 다른 부분의 형성을 나타내는 것으로 사료된다[10, 11].

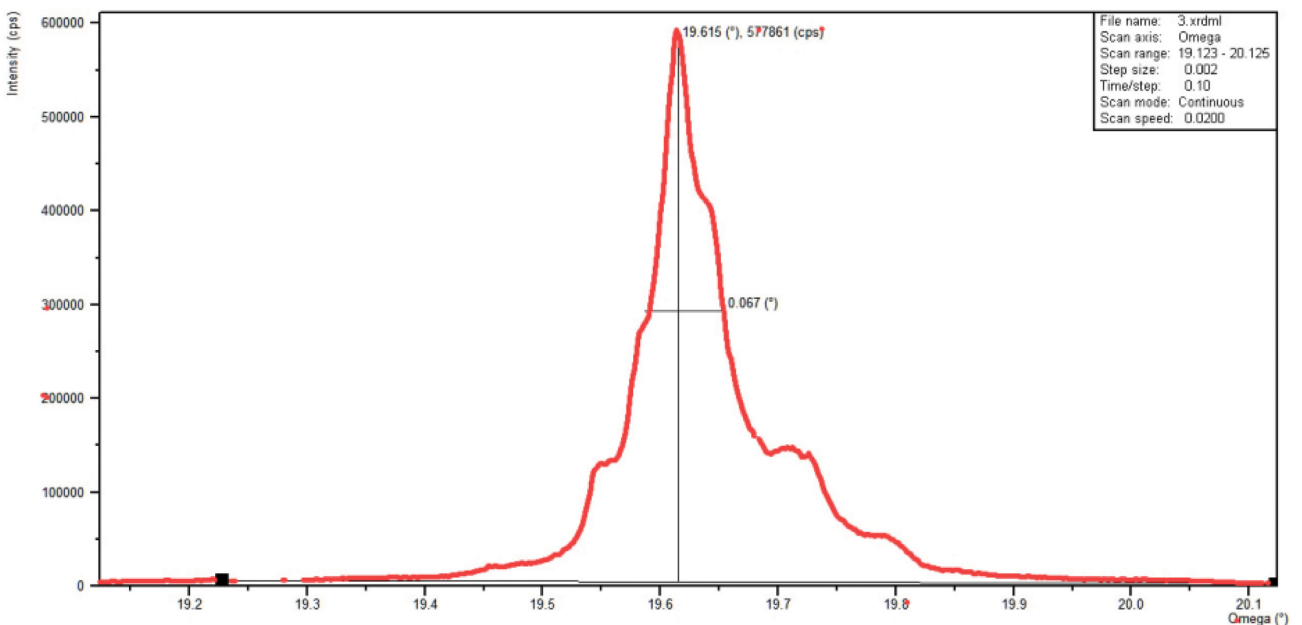


Fig. 5. Rocking curve of AlN seed crystal in Fig. 3(c). FWHM value was 241.2 arcsec.

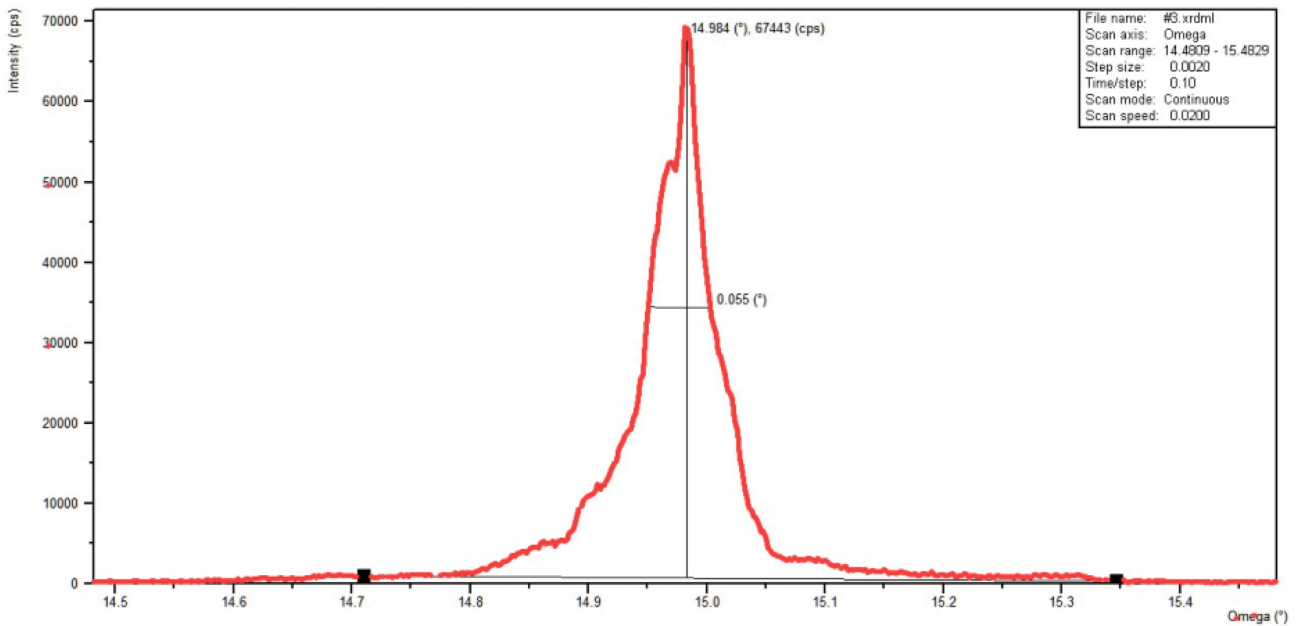


Fig. 6. Rocking curve of AlN crystal grown which was represented in Fig. 4(d). FWHM value was 198 arcsec.

#### 4. 결 론

4회의 반복 성장을 통하여 직경의 약 10 mm 정도 증대하여 성장된 결과를 이루었다. 이를 통하여 성장 조건의 반복성을 평가할 수 있었으며, 결정의 크기와의 관계 없이 성장 속도의 변화는 동일하게 나타났음을 알 수 있었다. 결정의 성장 조건에 대한 반복적인 실험을 통하여 동일한 성장 결과를 얻을 수 있었고, 성장 결정의 직경을 증대할 수 있는 결과를 얻을 수 있었다.

#### 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 ] S.M. Kang, "A study on the crystallite growth behavior in AlN crystal grown by PVT (Physical Vapor Transport) method", J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 26 (2016) 135.
- [ 6 ] S.M. Kang, "A study on growing of bulk AlN single crystals grown having a (011) growth face of by PVT method", J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol. 25 (2015) 32.
- [ 7 ] I. Satoh, S. Arakawa, K. Tanizaki, M. Miyanaga, T. Sakurada, Y. Yamamoto and H. Nakahata, "Development of aluminum nitride single-crystal substrates", SEI Tech. Rev. 71 (2010) 78.
- [ 8 ] G.A. Slack, "Aluminum Nitride Crystal Growth", Final Report (1979).
- [ 9 ] X. Gan, Z. Wang, W. Wang, T. Wang, H. Wu and C. Liu, "Growth and characterization of In<sub>0.17</sub>Al<sub>0.83</sub>N thin films on lattice-matched GaN by molecular beam epitaxy", Mat. Sci. Semi. Processing 27 (2014) 665.
- [ 10 ] T. Tahtamouni, J. Li, J. Lin and H. Jiang, "Surfactant effects of gallium on quality of AlN epilayers grown via metal-organic chemical-vapour deposition on SiC substrates", J. Phys. D: Appl. Phys. 45 (2012) 285103.
- [ 11 ] A. Dahiya, C. Opoku, D. Alquier, G. Vittrant, F. Cayrel, O. Graton, L. Hue and N. Camara, "Controlled growth of 1D and 2D ZnO nanostructures on 4H-SiC using Au catalyst", Nanoscale Res. Lett. 49 (2014) 379.