

A study on the growth of 3 inch grade AlN crystal

Seung-Min Kang[†]

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

(Received June 10, 2019)

(Revised June 17, 2019)

(Accepted June 17, 2019)

Abstract AlN (Aluminum Nitride) crystal which could be used to substrates for UV LEDs was grown by PVT (Physical Vapor Transport) method. 3 inch AlN single crystal with a thickness of 4 mm was grown using Polycrystalline seed for 120 hours. In this report, a result of 3 inch polycrystalline bulk AlN growth behavior using large size crucible and growth condition were reported.

Key words 3 inch, AlN crystals, Polycrystalline, PVT (Physical Vapor Transport), Growth behavior

직경 3인치의 AlN 단결정 성장에 관한 연구

강승민[†]

한서대학교 국제디자인융합전문대학원 디자인공학융합학과, 서산, 31962

(2019년 6월 10일 접수)

(2019년 6월 17일 심사완료)

(2019년 6월 17일 게재확정)

요약 자외선 LED용 기판소재로 응용가능한 AlN(질화알루미늄) 단결정을 물리기상이동법(Physical Vapor Transport Method)으로 성장하기 위해 성장 거동을 조사하였다. 다결정의 종자결정을 사용하였으며, 직경은 3인치급이었고, 120시간 동안 성장공정을 수행하여 길이 약 4 mm의 다결정상을 얻었다. 본 연구에서는 성장 조건과 대형의 도가니를 사용하였을 경우의 성장 거동에 대하여 고찰하여 보고자 하였다.

1. 서론

현재 AlN 단결정 소재는 6.2 eV의 밴드갭 에너지 특성으로 인하여 자외선 램프를 대체할 수 있는 LED로서의 응용성이 매우 크다. AlN 단결정은 PVT(Physical Vapor Transport) 법을 이용하여 성장하고 있으나, 대형화를 위한 직경 증대화 기술의 개발이 필요한 상태이고, 본 연구와 같은 3인치급 단결정 성장에 대한 연구가 매우 필요한 실정에 있다[1, 2]. 본 연구에서는 국내에서는 처음으로 3인치급의 AlN 단결정 성장에 있어서 결정의 성장 거동에 대하여 알아보고자 하였으며, 다결정상의 성장을 바탕으로 단결정 성장 조건과의 관계에 대하여 보고하고자 한다. 특히, 3인치의 AlN 단결정을 키우기 위한 종자결정이 현재는 없기 때문에 다결정성으로 성장된 다결정상을 종자결정으로 하여 성장된 결과를 고찰하고자 한다.

2. 실험

PVT 공정에 적용할 수 있도록 그래파이트 도가니를 디자인하였으며, 직경 3인치급의 다결정 종자결정을 제조하고, 이를 적용하여 2인치급의 AlN 단결정을 성장할 수 있는 성장 조건을 설정하였으며[3, 4], 이를 이용하여 3인치급의 성장 조건을 탐색하고자 하였다. AlN 단결정의 성장시 온도의 제어 방식을 기존의 하부온도 제어 방식과는 달리 상부온도를 제어하는 방식으로 하여 결정의 성장온도를 제어할 수 있도록 하였다. 성장 온도는 1900~2150°C에서 온도편차 1°C 이내로 제어하였으며, 성장 압력은 1~500 torr의 범위에서 제어하였다. 성장압력을 질소(N₂)가스를 사용하여 제어하였으며, 20~100 sccm 유량으로 조절하여 주입하였고, 편차 범위 약 10 torr 이내에서 제어하도록 하였다. 단결정을 성장하기 위한 원료로는 Tokuyama 사(일본)의 AlN 분말(순도: 99.95%, D₅₀: < 1.0 μm) 원료를 사용하였으며 전처리 공정을 진

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

행하여 성장용 원료로 사용하였다. 결정의 성장시간은 120시간 행하였다. 종자결정은 모양이 불규칙하고 성장 방향이 다른 다결정 형상을 갖고 있었고, 종자 결정을 상부에 고정하여 결정 성장용 도가니에 장착하여 성장하였다. AlN 단결정을 성장하기 위하여 사용한 도가니는 그라파이트 소재로 용기부와 뚜껑부로 나누어 제작 조립하였고, 총 외경 90 mm, 총 높이는 125 mm로 하였던 성장용 도가니의 디자인을 변경하여 길이를 약 75 mm 증가시킨 도가니를 사용하였다. 석영으로 제작된 반응관 내에 도가니를 장착하고, 그라파이트 단열재를 사용하여 보온되고 단열될 수 있도록 하였으며, 반응관 외부에 설치된 고주파 가열 코일(Radio Frequency heating coil)의 내에 위치시켜, 고주파유도가열 장치를 이용하여 가열하였다. 성장된 결정은 외형적인 관찰을 하였고, 이를 분석하여 성장 조건을 조절하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1에 본 연구에서 사용한 종자결정을 나타내었다.

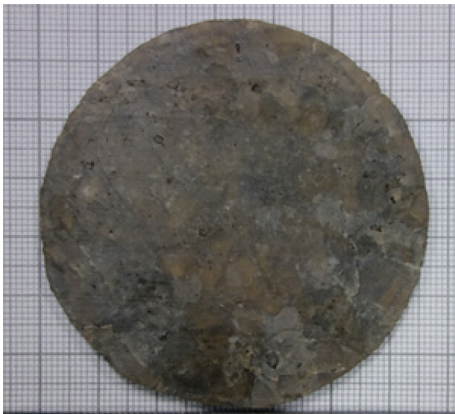


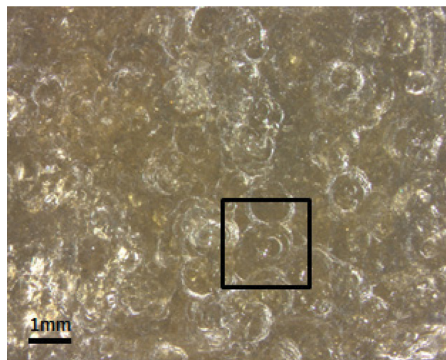
Fig. 1. A photograph of seed crystal obtained from as grown bulk polycrystalline of AlN which was sliced and polished.

기존 성장된 결정에서 절단하고 연마하여 얻어낸 종자결정이었다. 임의의 방향성을 가진 결정상이 함께 성장된 모습을 하고 있었고, 이를 사용하여 2차원의 성장을 유도하고, 단결정상의 영역을 확대하기 위한 성장 조건을 탐색하고자 하였다. Fig. 2에 종자 결정상에 일부 단결정상으로 성장된 부분의 영역을 광학현미경으로 관찰한 사진을 보였다. 결정상의 표면에 나선형의 성장 거동이 관찰되었으며, 이를 관찰한 결과를 Fig. 3에 나타내었다. Fig. 3에서 6대칭 요소를 가진 형태의 결정상이 성장된 것이 관찰되어, 결정 구조적으로 6각 기둥 형태의 단위정을 갖는 AlN 결정의 c면의 성장이 나타난 것으로 판단할 수 있었다[5]. 다결정 종자결정을 사용하여 얻어낸 성장 조건은 단결정 종자결정을 사용하여 성장하기 위한 중요한 기본 조건이 되며, 현재 3인치급의 AlN 단결정의 종자결정이 없으므로 다결정을 이용하여 성장 조건을 모색하는 것에 본 실험의 의의가 있다고 할 수 있다.

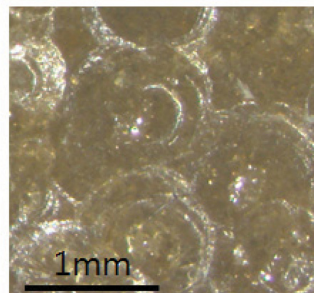
따라서, 이러한 c면 영역의 확대 성장을 위해 성장 조건을 변화하였으며, 그 결과 Fig. 4와 같은 결정상을 얻을 수 있었다. 성장 조건에서 온도 구배의 조절을 통하여 3차



Fig. 2. A photograph of as grown crystal of AlN having a diameter of 3 inch for 120 hours in 1st growth.



(a)



(b)

Fig. 3. A micrograph of regional part of crystal surface grown with single crystal structure. The square part of (a) is appeared in (b).

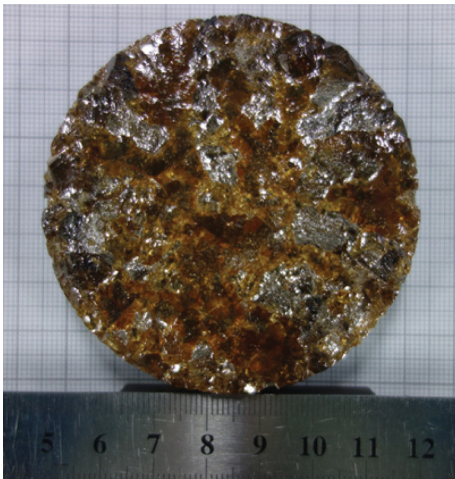


Fig. 4. A photograph of as grown crystal of Aluminum Nitride with controlled growth condition in 2nd growth.

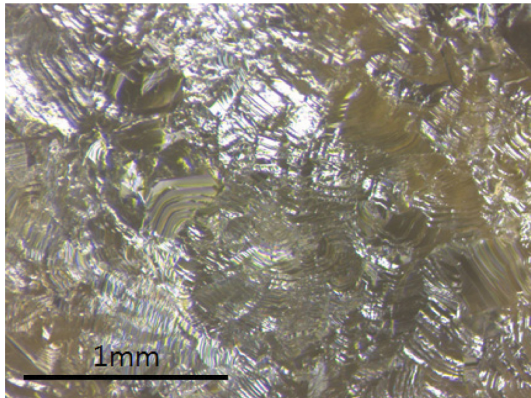


Fig. 5. A micrograph of the surface with single crystalline growth behavior.

원 성장 보다는 평면적인 2차원 성장을 할 수 있도록 하여 주었다. 1차 성장 조건에 비해 2차 성장 조건에서는 성장 계면에서 보다 적은 온도구배를 형성하도록 하여 3차원적 길이 방향의 성장 속도는 작게 하고, 성장축과 수직인 횡적 방향의 성장이 더 커지도록 유도하고자 하였다.

Fig. 3에서와 같은 단결정 성장 거동을 보이는 영역은 Fig. 4에서 투명한 질은 갈색의 영역으로 성장되었음을 알 수 있었고 1차 성장 때 보다는 많은 부분으로 성장되었음을 알 수 있었다. 성장 방향이 다른 결정들도 동반 성장된 결과를 나타내고 있다. 성장 방향이 다른 결정들의 성장 속도가 빠르게 성장된 결과 표면으로 튀어나오는 형상을 하고 있었다. Fig. 5는 단결정 영역으로 성장된 부분을 관찰한 사진으로 성장 무늬(striation)가 나타나면서 성장되는 거동을 보인 부분이다. 이러한 성장 무늬는 결정의 성장 종속 속도와 횡적 속도의 차이로 인하여 형성되고 있는 것으로서 좀 더 횡적 성장 속도가 크게 하여 줄 필요가 있음을 알 수 있었다[6].

성장된 결정의 중앙과 가장자리 부분에서의 평균 성장 속도는 약 15~20 $\mu\text{m/hr}$ 였으며, 단결정 영역에서는 다결정 영역에 비해 성장속도가 낮았다. 이는 다결정의 성장 시 임의의 성장 방향으로 성장하였기 때문에 결과적으로 빠른 성장속도로 성장되었기 때문으로 사료된다. 결정 성장 계면은 평형상태에서 성장되고 있으나, 온도구배가 적기 때문에 성장 속도는 낮게 유지되었음을 알 수 있었다[5, 6]. 또한, 성장 결정의 결과에서 AlN 결정은 입체적 성장 양상을 보이고 있어 평활한 facet 면 형태로 성장되는 양상으로 성장시키기 위해서는 성장 계면에서의 과포화도의 변화를 감소시키는 성장 조건을 부여할 필요가 있음을 알 수 있었다.

4. 결 론

AlN 결정을 종자결정을 사용하지 않고 성장시킨 대형의 벌크 단결정으로부터 절단 연마하여 얻어낸 종자결정을 이용하여 직경 3인치의 단결정을 성장할 수 있는 성장 조건을 탐색하고자 하였으며, 성장 조건에서 온도구배의 변화를 통하여 단결정 영역의 증가를 확인할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부에서 주관하는 전략적핵심소재기술개발사업(과제번호 10043791)으로 수행되었습니다.

References

- [1] B.T. Tran, N. Maeda, M. Jo, D. Inoue, T. Kikitsu and H. Hirayama, "Performance improvement of AlN crystal quality grown on patterned Si(111) substrate for deep UV-LED applications", *Sci. Rep.* 6 (2016) 35681.
- [2] Yu. N. Makarov, D.P. Litvin, A.V. Vasiliev, A.S. Sega, S.S. Nagalyuk, H. Helava, M.I. Voronova and K.D. Scherbachov, "3" 6H SiC wafers production for III-N epitaxy", *Proc. 7th Conf. Nitrides of Gallium, Indium and Aluminum* (2010) 23.
- [3] S.M. Kang, "The study on the formation of growth steps in the sublimation growth of SiC single crystals", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 11 (2001) 1.
- [4] S.M. Kang, "Growth of AlN crystals by the sublimation process", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 18 (2008) 68.
- [5] 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.
- [6] G.P. Yin and S.M. Kang, "A study on the AlN crystal growth using its thin films grown on SiC substrate", *J. Korean Cryst. Growth Cryst. Technol.* 28 (2018) 170.