

A study on the growth behavior of AlN single crystal growth by hydride vapor phase epitaxy

Seung-min Kang[†]

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

(Received June 10, 2024)

(Revised August 16, 2024)

(Accepted August 19, 2024)

Abstract Along with the use of wide bandgap energy materials such as SiC and GaN in power semiconductors and the development trend of devices, many research results have been reported, including the success of research on AlN single crystals with higher energy gaps and the development of 2-inch single crystal wafers. However, AlN single crystals grown using chemical vapor deposition have been developed into thin films less than a few micrometers thick, but there are almost no results with thicknesses greater than that. Therefore, in this study, we attempted to grow by applying HVPE (Hydride vapor phase epitaxy), one of the chemical vapor deposition methods. The grown AlN single crystal was manufactured using self-designed equipment, and we attempted to establish the conditions for manufacturing AlN single crystals on sapphire wafer. We would like to characterize the growth behavior through an optical microscope observation.

Key words HVPE, Sapphire wafer, AlN, Single crystal, Growth behavior

Hydride vapor phase epitaxy에 의한 후막 AlN 단결정의 성장 거동에 관한 연구

강승민[†]

한서대학교 디자인공학융합학과, 서산, 31962

(2024년 6월 10일 접수)

(2024년 8월 16일 심사완료)

(2024년 8월 19일 게재확정)

요약 SiC와 GaN 등의 광에너지갭 소재들의 전력반도체에 대한 활용과 소자의 개발 추세와 함께 더 높은 에너지갭을 갖는 AlN 단결정에 대한 연구도 2인치 단결정 웨이퍼의 개발 성공 등 많은 연구 결과가 보고되고 있다. 그러나, 화학기상 증착공법을 적용하여 성장된 AlN 단결정은 수 마이크로미터의 두께 이하의 박막은 개발되었으나, 그 이상의 두께를 갖은 결과는 거의 없다. 따라서, 본 연구에서는 화학기상증착공법중 하나인 HVPE(Hydride vapor phase epitaxy) 법을 적용하여 성장하고자 하였다. 성장된 AlN 단결정은 자체 제작된 설비를 이용하여 제작하였으며, 사파이어 기판을 사용하여, AlN 단결정을 제조하기 위한 조건을 확립하고자 하였고, 그 결과를 광학현미경 관찰을 통하여 성장거동을 관찰하고자 하였다.

1. 서론

AlN 단결정은 6.2 eV의 큰 밴드갭 에너지를 갖고 있어 자외선 LED로서의 응용성이 매우 크며, 차세대 전력 반도체 기판소재로 잠재성을 갖고 연구가 많이 진행되고 있다[1-3]. AlN 단결정은 PVT(Physical Vapor Transport) 법을 적용하여 성장되고 있으나[4,5], 아직 대형화를 위한 직경 증대화 기술이 필요한 상태이고, 또한 고품질의 단파장 영역(300 nm 이하 파장 대역)에서의 광투과도가

낮은 것이 문제가 되고 있어 이를 해결하기 위한 연구가 필요하다[6-8].

본 연구에서는 HVPE(Hydride vapor phase epitaxy) 법을 사용하여 사파이어 기판상에 AlN 단결정을 성장하고자 하였다[9,10]. 성장시 공급되는 Al(3족 원소)은 투입되는 염화수소(HCl) 가스와 반응하여 $AlCl_3$ 의 성분으로 공급되고, 5족의 질소는 암모니아(NH_3)를 공급하여 로내에서 반응이 이루어지도록 하였다. 이때 투입되는 염화수소와 암모니아 가스의 비를 이하 서술에서 3/5비라고 부르기로 한다.

본 연구를 통하여 공급되는 3/5 비 가스의 비율에 따라 결정이 성장하는 거동이 다르게 나타나고 있음을 알

[†]Corresponding author

E-mail: topazksm@naver.com

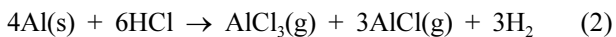
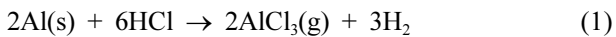
았으며, 이에 대하여 보고하고자 한다.

2. 실험 방법

본 연구에서 성장용 장치로 사용한 성장로의 모식적 구조를 Fig. 1에 보였다. 성장로는 자체 설계하여 제작된 수직형 HVPE 성장로를 사용하였고, 상압하에서 성장을 수행하였다. Al 원료를 장비의 상부에 위치하여, 저항발열 방식을 사용하여 가열하였으며, 온도는 500°C로 유지하였다. 성장을 위한 성장 영역은 그라파이트 소재를 발열하도록 하였고, 이는 고주파 유도 가열(Radio Frequency Induction Heating) 방식을 적용하였다.

반응을 위한 활성가스(Active gas)로는 염화수소(HCl)와 암모니아(NH₃)를 사용하였고, Al 금속을 구형으로 제작하여 반응하도록 하였으며, AlCl₃를 생성하여 공급하는 3족원료로 사용하였다. 기판으로는 c면 (0001) 사파이어를 사용하였고, 성장 전단계에서 암모니아(NH₃)로 5~10분간 사파이어 표면을 질화(Nitridation) 처리한 후 성장을 하였다.

Al 금속의 HCl 가스와의 반응은 다음과 같은 반응이 일어날 것으로 예상되는데 생성된 AlCl₃의 양에 따라 성장의 거동이 달라질 것으로 사료된다[8].



반응을 통하여 AlCl₃ 가스가 생성되어, 질소(N₂)에 의

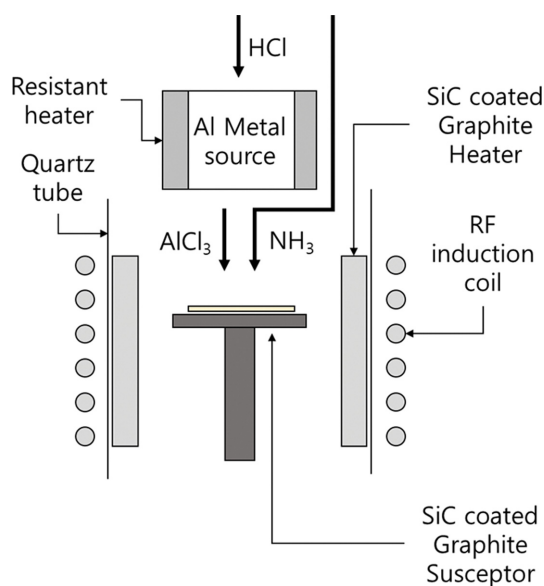


Fig. 1. A schematic diagram of self-designed HVPE (Hydride vapor phase epitaxy) facility. The reactor tube was made by quartz [10].

해 결정이 성장하는 성장영역으로 이동되며, 공급되는 NH₃ 가스와 혼합되어 성장영역에서 AlN이 합성된다. 합성된 AlN 분자들은 주어진 온도에서 이동하며, 기판상에 증착하여 핵생성과 함께 결정상으로 배열하면서 성장하는 반응이 일어난다.

본 연구에서는 성장 온도를 1,250°C로 하여 성장하였다. 온도의 측정은 광온계를 사용하여 성장영역에 위치한 지지대의 하부온도를 측정하여 성장온도로 사용하였다, 3족/5족의 비를 0.5, 1, 2로 변화하였을 때의 성장 거동을 비교하였으며, 성장된 결정의 형상은 광학현미경(Optical microscope)을 사용하여 고찰하였다.

3. 결과 및 고찰

본 연구에서 적용한 3족/5족 비는 0.5, 1, 2로 하여 성장하였으며, 성장된 결과를 광학현미경으로 관찰하고, 그 결과를 각각 Figs. 2~4에 보였다. Figure 2에서는 3족/5족 비를 0.5로 하여 성장된 결과로서, 구형 형태의 모습으로 성장되었고, 길이 성장이 수반되어 성장하는 거동을 보이고 있다. Figure 3은 염화수소의 양을 증가하여 3족/5족의 비를 1로 정하여 성장된 결과이다. 성장된 결정의 전체모습은 Fig. 2에 비해 편평한 형상으로 성장되었음을 알 수 있다.

두 결과를 비교 고찰한다면, Fig. 3의 조건이 횡적 성장 거동을 잘 보이고 있음을 말할 수 있다. 즉, 3족의 양이 증가됨에 따라 종적 성장에서 횡적 성장의 거동을 보임을 시사한다고 사료된다. Figure 4의 결과는 이를 잘 설명할 수 있다고 사료된다. 즉, 3족/5족의 비가 2로 증가하였을 때의 성장 거동은 거의 횡적 성장 거동이 잘 진행되었음을 말하고 있다. Figure 4에서 보이는 밝은 색의 부분은 균열에 의해 성장 결정이 굴곡되어 나

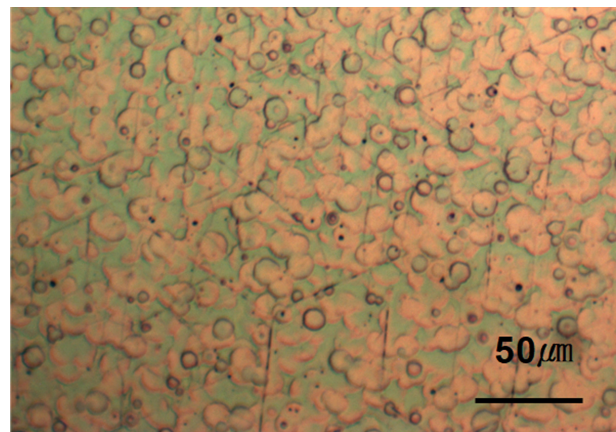


Fig. 2. Optical micrograph of AlN crystal grown on sapphire substrate of c plane. 3/5 ratio was 0.5 and the thickness of the crystal was about under 2 μm.

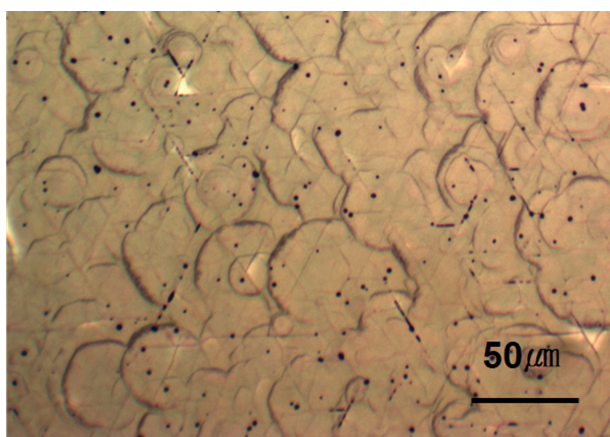


Fig. 3. Optical micrograph of AlN crystal grown on sapphire substrate of c plane. 3/5 ratio was 1 and the thickness of the crystal was about under 4 μm .

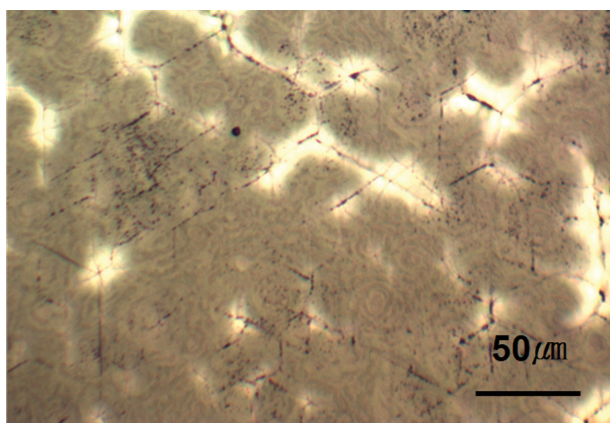


Fig. 4. Optical micrograph of AlN crystal grown on sapphire substrate of c plane. 3/5 ratio was 2 and the thickness of the crystal was about under 14 μm .

타난 빛의 간섭 현상이다. Figure 4의 결과로부터 3족/5족의 비가 증가함에 따라 3차원 입체성장의 거동이 2차원적인 평면 성장의 거동으로 변화될 수 있음을 알 수 있었다.

또한, 성장된 결정의 두께에서 보면 3족/5족의 비가 증가할수록 두께도 같이 증가되는 경향을 보이고 있다. 그러나, 이는 공급되는 총 가스의 양과도 관계가 있기 때문에, 본 연구에서는 주된 인자로 간주하지 않았지만, 3족/5족이 비가 증가할수록 편평한 2차원적 성장을 보이면서도 두께는 증가하는 경향을 보이고 있었다. 이는 공급되는 3족의 양이 증가함에 따라 성장에 참여하는 염화알루미늄(AlCl_3)의 양이 증가되고, 증가된 양만큼 성장 영역에서의 반응도 증가하게 되어 성장속도가 증가하는 결과로 나타나게 되었다고 고찰할 수 있다. 즉, 일반적으로는 성장속도가 빨라지게 되면, 2차원적 성장 거동은 3차원적 성장인 종적 성장 거동을 보이지만, 5족의 양에

관계하여 성장속도가 증가하면서 동시에 편평한 2차원적 성장 양상이 나타날 수 있다고 고찰할 수 있다.

4. 결 론

본 연구에서는 AlN 단결정은 HVPE 법으로 성장하였으며, 성장된 결과에 대하여 광학현미경으로 관찰한 결과를 성장시 공급되는 3족/5족의 가스의 비율에 따른 성장 거동의 변화를 고찰하여 보았다. 성장된 단결정은 3족/5족의 비가 증가할수록 편평하고 2차원적이 면성장의 거동을 보임을 알 수 있었다.

이는 3족의 공급이 증가할수록 Al 원소들이 증착되는 기관의 표면에서의 반응을 통한 면방향의 결정 성장 거동을 보이기 때문으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부에서 실시하는 우수기업연구소육성사업(ATC+)으로 진행되었으며 이에 감사드립니다 (과제번호: 20018017).

References

- [1] G.A. Slack, "Growth of AlN single crystals", MRS Online Proc. Lib. 512 (1998) 35.
- [2] L.J. Schowalter, Y. Shusterman, R. Wang, I. Bhat, G. Arunmozhi and G.A. Slack, "Epitaxial growth of III-nitride layers on aluminum nitride substrates", MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. 4 (1999) 411.
- [3] S. Bae, I. Jeon, M. Yang, S.N. Yi, H.S. Ahn, H. Jeon, K.H. Kim and S.W. Kim, "HVPE growth of Mg-doped AlN epilayers for high-performance power-semiconductor devices", J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Tech. 27 (2017) 275.
- [4] H. Son, T.Y. Lim, M.J. Lee, J.H. Kim, Y.H. Kim, J.H. Hwang, H.K. Oh, Y.J. Choi, H.Y. Lee and H.S. Kim, "Effect of V/III ratio variation on the properties of AlN epilayers in HVPE", Korean J. Mater. Res. 23 (2013) 732.
- [5] Y. Kumagai, Y. Enatsu, M. Ishizuki, Y. Kubota, J. Tajima, T. Nagashima, H. Murakami, K. Takada and A. Koukitu, "Investigation of void formation beneath thin AlN layers by decomposition of sapphire substrates for self-separation of thick AlN layers grown by HVPE", J. Cryst. Growth 312 (2010) 2530.
- [6] 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.
- [7] A. Nikolaev, I. Nikitina, A. Zubrilov, M. Mynbaeva, Y.

- Melnik and V. Dmitriev, "AlN wafers fabricated by hydride vapor phase epitaxy", *MIJ-NSR* 5 (2000) 432.
- [8] T. Baker, A. Mayo, Z. Veisi, P. Lu and J. Schemitt, "High temperature HVPE of AlN on sapphire templates", *Physica Status Solidi* 11 (2014) 373.
- [9] S.M. Kang and G.P. Yin, "A study on the growth morphology of AlN single crystal according to the change in temperature using HVPE method", *J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Tech.* 34 (2024) 36.
- [10] S.M. Kang and G.P. Yin, "A study on the growth behavior of AlN single crystal according to the change of N_2 in HVPE process", *J. Korean Cryst. Growth and Cryst. Tech.* 34 (2024) 61.