Journal of the Korean Institute of Electrical and Electronic Material Engineers, Vol. 21, No. 9, p. 795, September 2008.

논 문 21-9-3

# 새로운 가이드 튜브를 통한 6H-SiC 단결정의 직경 확장에 관한 연구

# The Diameter Expansion of 6H-SiC Single Crystals by the Modification of Inner Guide Tube

손창현[1], 최정우[1], 이기섭[2], 황현희[2], 최종문[2], 구갑렬[3], 이원재[1], 신병철[1,a]
(Chang-Hyun Son[1], Jung-Woo Choi[1], Gi-Sub Lee[2], Hyun-Hee Hwang[2], Jong-Mun Choi[2], Kap-Ryeol Ku[3], Won-Jae Lee[1], and Byoung-Chul Shin[1,a])

**Abstract**

A sublimation method using the SiC seed crystal and SiC powder as the source material is commonly adopted to grow SiC bulk single crystal. However, it has proved to be difficult to achieve the high quality crystal and the process reliability because SiC single crystal should be grown at very high temperature in closed system. The present research was focused to improve SiC crystal quality grown by PVT method through using the new inner guide tube. The new inner guide tube was designed to prevent the enlargement of polycrystalline region into single crystalline region and to enlarge the diameter of SiC single crystal. The 6H-SiC crystals were grown by conventional PVT process. The seed adhered on seed holder and the high purity SiC source materials are placed on opposite side in sealed graphite crucible surrounded by graphite insulation. The SiC bulk growth was conducted around 2300 ℃ of growth temperature and 50 mbar in an argon atmosphere of growth pressure. The axial thermal gradient across the SiC crystal during the growth was estimated in the range of 15~20 ℃/cm.

**Key Words** : SiC, Sublimation, Graphite crucible, SiC diameter expansion, Guide tube, Poly-crystalline region, Single-crystalline region

## 1. 서 론

최근 2인치와 3인치 SiC 웨이퍼의 상용화가 가능한 상태이지만, SiC기판을 이용한 상업적 소자는 SiC 웨이퍼의 높은 수율을 위한 유효크기의 제한성과 SiC 웨이퍼의 결정질로 인한 큰 한계에 다다르고 있다. SiC 소자의 효율적인 응용을 위해 대구경의 결정 내에서 결정 결함의 감소가 요구 되고 있으며[1], 많은 SiC 연구소 및 그룹들이 SiC 벌크 성장이나 새로운 재료의 접목을 통해 고품질의 SiC 결정질을 개선하는데 초점을 맞추고 있다[2,3].

SiC 성장에 있어서 잉곳의 대구경화를 구현하기 위한 방법으로 도가니 내부의 디자인이 중요하게 작용된다. 종래의 가이드 튜브를 사용하였을 경우, 다결정과 단결정이 분리 되지 않고 단결정 영역과 다결정 영역이 같이 성장이 되기 때문에, 경계면에 큰 응력(stress)이 작용하여 크랙과 같은 결함이 집중되어 결정질이 저하 될 뿐 아니라, 성장이 계속 될 경우 다결정이 단결정 영역내로 침입을 하여 단결정의 직경을 감소시킨다. 이러한 이유로 단결정과 다결정의 분리는 필수적이다.

1. 동의대학교 전자세라믹스센터
(부산시 부산진구 엄광로 995)
2. 동의대학교 나노공학부
3. Crysband (Home Page : www.crysband.com)
a. Corresponding Author : shinbc@deu.ac.kr
접수일자 : 2008. 6. 4
1차 심사 : 2008. 8. 6
심사완료 : 2008. 8. 22

본 연구에서는 새로운 형태의 가이드 튜브를 사용함으로써 다결정 침입을 억제하여, 다결정과 단결정이 붙지 않고 대구경의 단결정 SiC 잉곳을 얻기 위한 실험을 실시하였다.

## 2. 실 험

시뮬레이션 기법을 이용하여 종래의 가이드 튜브를 사용한 시뮬레이션 데이터를 확보하였다. 사용한 프로그램명은 Sublimation Bulk Crystal Growth Simulator Virtual Reactor 4.9 (Semiconductor Technology Research, Inc.)이다. Boundary condition은 도가니 내벽/gas interface를 HetChem_SiC, Carbon(Surface type)으로 하였고, powder/gas interface는 Noncrystalytic이다. Seed crystal/gas interface는 HetChem_SiC, SiC (Surface type)으로 하여 실시하였고 Fitting은 off로 했다. 실제 성장 시간은 30시간으로 하였고, 성장 압력은 30~60 mbar 그리고 성장 온도는 도가니의 상부 2100~2300 ℃, 하부 2200~2400 ℃로 적용하여 시뮬레이션을 진행하였고, 그 결과 산출된 성장 시스템 내부의 온도분포 및 최종 결정 형상을 그림 1, 2에 나타내고 있다.

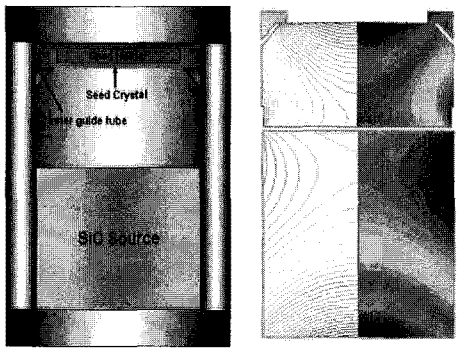



**그림 1.** 실리콘 카바이드 성장에 사용하는 전형적인 도가니 구조와 시뮬레이션을 통하여 얻은 온도분포.

**Fig. 1.** Typical crucible design for SiC growth and temperature pattern resulted from simulation.

그림 2는 종래의 가이드 튜브를 이용하여 성장 시뮬레이션을 실행한 결과이다. 시뮬레이션 결과에서는 다결정 침입이 없는 오목한 형상의 잉곳의 결과를 얻었다. 종래의 가이드 튜브와 새로운 가이드 튜브를 이용하여 6H-SiC 단결정이 성장되었다. SiC 종자정을 흑연 종자정 홀더에 부착하여 흑연 도가니에 장착하였다. 그리고 각각의 가이드 튜브를 사용하여 SiC 분말에서 승화된 소스가 종자정 쪽으로 집속되도록 하였다(그림 3).

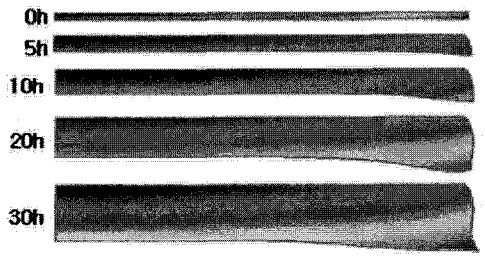
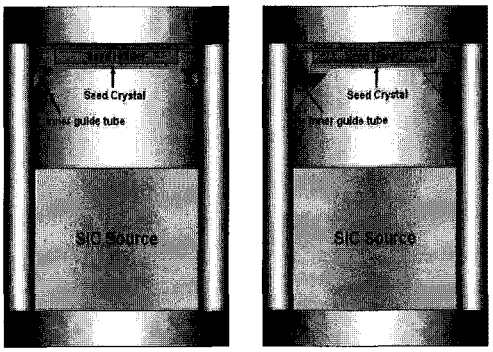



**그림 2.** 종래의 가이드 튜브를 사용한 성장 시뮬레이션 결과.

**Fig. 2.** Simulation results with conventional guide tube.




(a) (b)

**그림 3.** 실리콘 카바이드 성장에 사용하는 도가니 구조.
(a) 종래의 가이드 튜브를 사용한 도가니 구조, (b) 새로운 가이드 튜브를 사용한 도가니 구조

**Fig. 3.** Crucible design for SiC growth.
(a)a crucible design using conventional guide tube, (b)a crucible design using new guide tube

하지만, 실제 종래의 가이드 튜브를 이용하여 잉곳을 성장 시킨 결과(그림 4), 다결정 영역이 단

결정 영역내로 침입함으로써 더 이상 단결정 영역이 확장되지 않고 성장공정 중에 단결정 내부에 침입한 다결정의 급격한 성장으로 인해 잉곳 중심 부근까지 다결정이 생성 된 잉곳이 관찰 되었다.

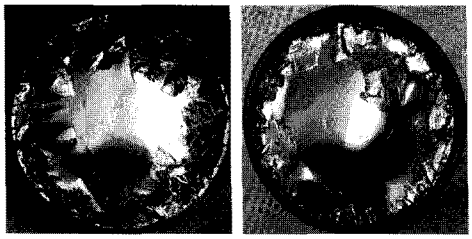


**그림 4.** 기존의 가이드 튜브를 이용하여 성장 시킨 SiC crystal ingots.

**Fig. 4.** Silicon carbide single crystal ingot grown by PVT method using conventional guide tube.

이어 본 연구에서는 새로운 가이드 튜브를 사용하여, 수직 구조의 승화성장로에서 6H-SiC(0001) 기판(Crysband社)을 종자정으로 사용하여, 단결정 잉곳을 성장시켰다. 이때 사용한 종자정은 가장자리에 다결정이 존재한 웨이퍼(그림 5)를 사용하여 흑연 종자정 홀더에 부착하였다. 본 실험에서 사용한 승화성장로의 구조는 그림 6에 나타냈다.

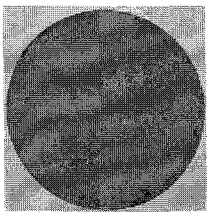


**그림 5.** 가장자리에 다결정이 둘러싸인 6H-SiC 단결정 웨이퍼.

**Fig. 5.** 6H-SiC single crystal wafer is sur rounded by polycrystalline.

단결정 성장 공정은 그림 7과 같고 공정 조건은 시뮬레이션을 통해 얻어진 성장 압력 30~50 mbar 그리고 상·하부 도가니 온도 2100~2300 ℃로 적용하였다. 하지만 성장 시간은 50시간으로 변경하여 웨이퍼 획득 수율이 높은 단결정 잉곳이 성장되도록 하였다. 또한 성장 전 1500℃에서 베이킹 공정을 실시하여 SiC 분말 및 도가니, 단열재 등에 포함되어 있던 불순물을 제거한 후 성장을 실시하였다.

**그림 6.** 실리콘 카바이드 성장용 수직구조의 승화성장로.

**Fig. 6.** A vertical furnace for the silicon carbide growth.

온도 측정은 단열재 내부에 hole을 뚫은 후 pyrometer를 수직로 상·하부에 장착하여 온도를 측정하였고, 99.9999 %의 알곤 가스를 캐리어 가스로 사용하였다. 성장된 단결정 잉곳은 single wire saw를 이용하여 횡단면 절단을 하였고, diamond slurry를 사용하여 양면 폴리싱을 하였다. 양면 폴리싱이 끝난 시편은 광학현미경의 투과모드와 편광 필름을 이용하여 분석하였다. 그리고 XRD를 이용한 결정의 다형 분석을 위한 시편은 잉곳의 기저면(결정의 C축)을 따라 절단하여 폴리싱을 하였다.

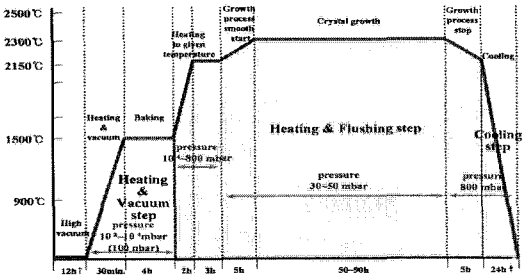



**그림 7.** 실리콘 카바이드 단결정의 공정 조건.

**Fig. 7.** The process condition for SiC single crystal growth.

## 3. 결과 및 고찰

SiC 잉곳 성장이 진행됨에 따라 실리콘 카바이드 원료 분말과 종자정 사이의 간격이 작아진다. 그에 따라 그 사이의 과포화도가 변화하게 되고 이러한 과포화도가 임계값을 넘게 되면 다결정 SiC가 단결정 SiC보다 성장하는 속도가 빨라진다 [4]. 종래의 가이드 튜브를 사용할 경우 단결정과 다결정이 동시에 성장되면서, 다결정이 단결정의 영역으로 확장되면서 성장된다. 그 결과로 다결정 영역이 단결정 영역을 덮으면서 성장함으로, 단결정 영역이 줄어들게 된다(그림 8). 하지만 새로운 가이드 튜브를 사용함으로써 다결정 영역으로 공급되는 소스를 억제하고, 단결정 영역으로만 소스가 공급되어 단결정 영역이 확장되면서 단결정 SiC의 직경이 확장되는 것으로 판단된다. 이러한 성장 양상은 그림 8과 9에서 나타내었다. 기존의 가이드 튜브를 사용하여 성장 시킨 잉곳의 성장률은 185 ㎛/hr이였으며, 새로운 가이드 튜브를 사용하여 성장 시킨 잉곳의 성장률은 220 ㎛/hr으로 보다 높은 성장률을 보였다.

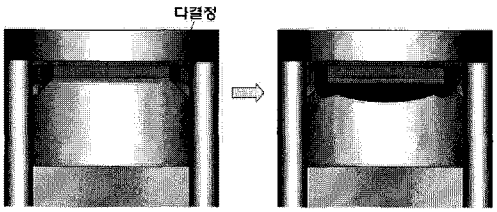



**그림 8.** 기존의 가이드 튜브를 사용하여 성장 시킨 다결정 실리콘 카바이드의 성장 양상.

**Fig. 8.** The formation of polycrystalline region in SiC growth process using conventional guide tube.

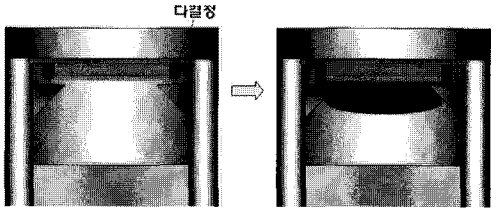



**그림 9.** 새로운 가이드 튜브를 사용하여 성장 시킨 다결정 실리콘 카바이드의 성장 양상.

**Fig. 9.** The formation of polycrystalline region in SiC growth process using new guide tube.

그림 10은 새로운 가이드 튜브를 이용하여 성장시킨 SiC 잉곳이다. 종래의 가이드 튜브를 사용한 잉곳과는 다르게 단결정 영역과 다결정 영역의 경계가 명확하며, 가이드 튜브의 일부분에만 다결정이 성장되었다.

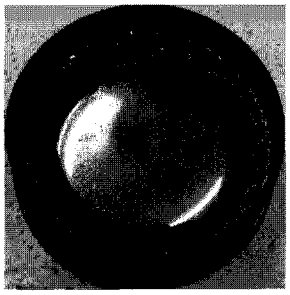


**그림 10.** 새로운 가이드 튜브를 이용하여 PVT법으로 성장된 실리콘 카바이드 단결정 잉곳.

**Fig. 10.** Silicon carbide single crystal ingot grown by PVT method using new guide tube.

그림 10에서 볼 수 있듯이 성장된 잉곳은 가장자리에 다결정이 존재하였던 종자정을 사용하였지만, 다결정 침입이 없는 단결정 SiC 잉곳이었다. Seed의 가장자리에 있던 다결정 SiC의 성장 양상을 관찰하기 위하여 잉곳을 횡단면으로 절단하였고, 이를 폴리싱하여 시편을 제작하였다.

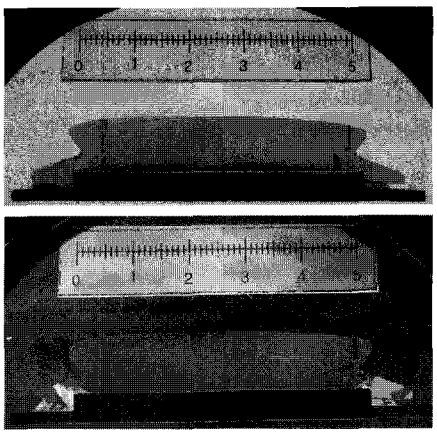
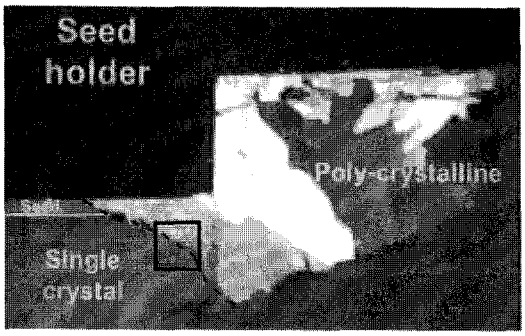
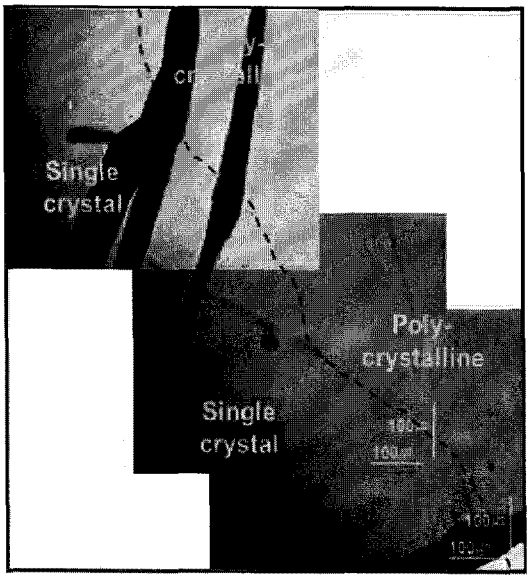



**그림 11.** SiC 단결정 잉곳 의 횡단면 사진.

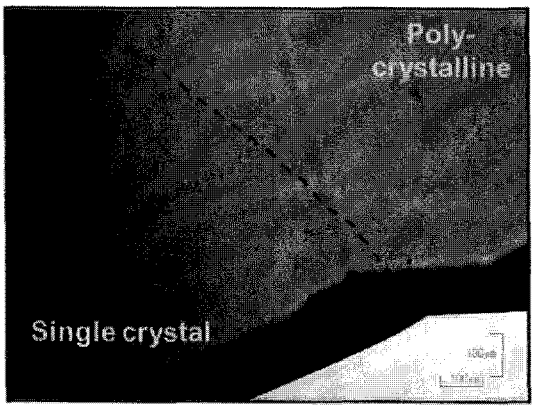
**Fig. 11.** Cross- section images of SiC single crystal.




(a) 다결정 SiC 성장 경로




(b) 다결정 SiC 성장 경로의 광학현미경 이미지



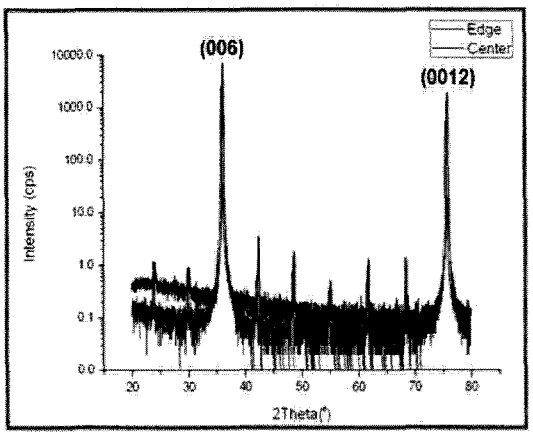

(c) 다결정 SiC가 제어된 광학현미경 이미지

**그림 12.** 광학현미경을 이용하여 SiC 단결정 잉곳의 횡단면의 사진.

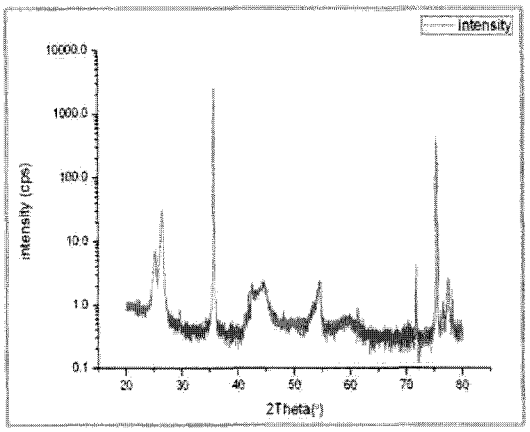
**Fig. 12.** Optical microscope images of cross-section of SiC single crystal.

상기 시편을 편광 필름을 이용하여 분석한 결과 초기에 종자정 가장자리에 있는 다결정 SiC가 단결정과 동시에 성장하는 것을 볼 수 있으나, 새로운 가이드 튜브에 의해 다결정의 성장이 억제되어, 단결정 영역이 확장되어 직경 확장이 된 것을 볼 수 있다.

광학현미경을 통하여 다결정 SiC의 성장 양상을 살펴 본 결과(그림 12(a)) 다결정 SiC가 단결정 SiC와 함께 성장되다가 새로운 가이드 튜브에 의해서 다결정 SiC의 성장이 억제 되고 단결정 SiC가 직경을 확장하며 성장하는 것을 재확인할 수 있었다. 그리고 그림 12(b)에서는 명확하게 나타나는 다결정 영역과 단결정 영역의 경계선이 잉곳 표면에서




(a) 단결정 영역




(b) 다결정 영역

**그림 13.** XRD를 이용한 결정의 다형 분석.

**Fig. 13.** X-ray diffraction patterns of SiC single crystal.

종결된다는 것을 확인 할 수 있다. 또한 기존의 가이드 튜브를 사용한 경우 성장 초기에 종자정 표면과 가이드 튜브의 그라파이트의 반응으로 인해 잉곳의 테두리 부분에 탄소의 침입이 발생하는 경우가 있다. 이러한 경우가 침입된 탄소에 계속해서 탄소 소스 물질이 적층이 되면서 잉곳의 표면 까지 계속 해서 성장이 되면서 결정질에 좋지 못한 영향을 미치게 된다. 하지만 새로운 가이드 튜브를 사용함으로 해서 탄소가 침입하여 잉곳의 표면까지 올라오지 못하게 막는 역할을 하였다. 그림 12(c)는 두 영역의 색(녹색을 띈 영역 - 단결정 영역 / 갈색을 띈 영역 - 다결정 영역)을 통해 확실히 구분될 수 있다.

XRD를 이용한 각 영역의 다형 분석 결과, 단결정 영역은 모두 (006)과 (0012)의 주 피크 사이에 이중 회절효과에 의한 5개의 작은 피크가 확인되어 결정다형이 6H-SiC로 나타났다.

## 4. 결 론

시간이 지남에 따라 SiC 원료분말과 종자정 사이의 간격이 변화한다. 그에 따라 그 사이의 과포화도가 변화하게 되고 이러한 과포화도가 임계값을 넘게 되면 다결정 SiC가 단결정 SiC보다 성장하는 속도가 빨라진다. 그래서 종래의 가이드 튜브를 사용할 경우 다결정 영역으로 공급되는 source를 억제하지 못해 초기에는 단결정과 다결정이 동시에 성장되고 공정이 진행됨에 따라 다결정이 단결정의 영역으로 확장되면서 성장된다. 그 결과로 다결정 영역이 단결정 영역을 덮으면서 성장함으로, 잉곳 표면까지 크게 영향을 미치게 된다.

하지만, 새로운 가이드 튜브를 사용함으로써 다결정 영역으로 공급되는 source를 억제하여 다결정성장이 억제되어 단결정 영역이 확장되면서 단결정 SiC의 직경이 확장되는 것으로 판단된다. 이것은 종자정의 가장자리와 인접한 새로운 가이드 튜브의 tapered cone structure는 다른 부분에 비해 온도가 높고 이 부분의 높은 온도로 인해 다결정 영역으로 공급되는 source들의 재결정화가 어려워져 다결정 영역이 억제가 되고 단결정 영역의 확장을 원활하게 하였다고 판단된다.

따라서, 종래의 가이드튜브의 구조를 변경하는 것만으로도 SiC 단결정의 직경 확장 및 다결정 성장 억제를 획득할 수 있었다. 상기한 기술을 바탕으로 여러 가지 응용 연구가 시도되길 기대한다.

## 감사의 글

이 논문은 2007학년도 동의대학교 교내연구비에 의하여 수행되었습니다(2007AA191).

## 참고 문헌

[1] J. C. Zolper and M. Skowronski, "Advances in silicon carbide electronics", MRS Bulletin, Vol. 30, p. 273, 2005.

[2] Z. Herro, M. Bickermann, B. M. Epelbaum, P. Masri, and A. Winnacker, "Effective increase of single-crystalline yield during PVT growth of SiC by tailoring of radial temperature gradient", Mater. Sci. Forum., Vol. 433-436, p. 67, 2003.

[3] Y. Kitou, W. Bahng, T. Kato, S. Nishizawa, and K. Arai, "Flux-controlled sublimation growth by an inner guide-tube", Mater. Sci. Forum., Vol. 389-393, p. 83, 2002.

[4] Yu. M. Tairov, "Growth of bulk SiC", Materials Science and Engineering B29, p. 83, 1995.