(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2012-0019605
(43) 공개일자 2012년03월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C04B 35/64 (2006.01) *B28B 11/00* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2010-0082891
(22) 출원일자 2010년08월26일
심사청구일자 2010년08월26일

(71) 출원인
한국기계연구원
대전광역시 유성구 가정북로 156 (장동)
(72) 발명자
이세훈
서울특별시 은평구 녹번동 대림아파트 1동 603호
김해두
경상남도 창원시 반림동 현대아파트 107-1304
안병훈
부산광역시 영도구 청학동로 9, B동 105호 (청학동, 청산주택)
(74) 대리인
강민수, 최환욱

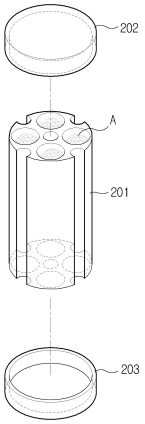
전체 청구항 수 : 총 6 항

(54) 발명의 명칭 **스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형**

(57) 요 약

본 발명은 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형에 관한 것으로서, 보다 상세하게는 금형 몸체에 세라믹 분말 합성을 위한 원료분말이 장입되는 관체를 두 개 이상 형성시키며, 상기 금형 몸체를 높이 방향으로 확장하고, 금형 단면적이 최소화되도록 설계된 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 합성용 금형을 제공함으로써, 종래의 단일 관체를 구비하는 금형 시스템에 비하여 1회 생산 가능한 분말의 양을 크게 증가시킬 수 있으며, 종래의 금형 시스템에서 인가되는 값에 비하여 낮은 전력을 가함으로써 금형 가열온도를 낮춤에도 불구하고 효과적으로 분말합성이 이루어질 수 있으며, 따라서 기존의 방법보다 더 미세한 분말을 합성할 수 있게 되는 효과가 기대된다.

대 표 도 - 도2



특허청구의 범위

청구항 1

스파크 플라즈마 소결을 적용하기 위한 금형 시스템에 있어서,

내부에 세라믹 분말 합성을 위한 원료분말이 장입되는 두개 이상의 관체를 포함하는 금형 몸체;

및 상기 금형몸체의 상부와 하부에 각각 접촉되는 한 쌍의 금형 커버;

를 포함하여 구성되는 것을 특징으로 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 금형은 금형의 높이를 조절함으로써 스파크 플라즈마 소결을 위한 원료의 양을 조절하는 것을 특징으로 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 금형은 복수의 관체 사이에 적어도 하나의 가공부가 형성되어, 금형 몸체의 단면적을 줄임으로써 분말 합성을 위한 전류 및 전압의 양을 최소화하는 것을 특징으로 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형.

청구항 4

제 3 항에 있어서,

상기 가공부는 금형 몸체의 내부 또는 외주부에 형성되는 것을 특징으로 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 관체 형상의 금형 몸체는 그 외주부 또는 내주부의 횡축 단면이 원형, 타원형, 다각형 중 선택되는 적어도 어느 하나인 것을 특징으로 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형.

청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 관체의 내경은 2 ~ 4㎝의 범위인 것을 특징으로 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 대량 합성용 금형에 관한 것으로서, 보다 상세하게는 금형 몸체에 세라믹 분말 합성을 위한 원료분말이 장입되는 관체를 두 개 이상 형성시키며, 상기 금형 몸체를 높이 방향으로 확장하고, 금형 단면적이 최소화되도록 설계된 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 합성용 금형을 제공함으로써, 종래의 단일 관체를 구비하는 금형 시스템에 비하여 1회 생산 가능한 분말의 양을 크게 증가시킬 수 있으며, 종래의 금형 시스템에서 인가되는 값에 비하여 낮은 전력을 가함으로써 금형 가열온도를 낮춤에도 불구하고 효과적으로 분말합성이 이루어질 수 있으며, 따라서 기존의 방법보다 더 미세한 분말을 합성할 수 있게 되는 효과가 기대된다.

배 경 기 술

[0002] 세라믹 분말을 합성하는 방법 중 스파크 플라즈마 소결법(Spark plasma sintering method)은 기존의 합성온도보다 낮은 온도, 기존의 유지시간보다 짧은 유지시간으로 세라믹 분말을 합성할 수 있는 방법으로 알려져 있어 새로이 많은 연구가 진행되고 있다.

[0003] 종래의 스파크 플라즈마 분말 합성에 사용되는 금형 시스템은 전극과 금형이 조합된 시스템으로서, 이중 특히 금형에 관해서는 도 1에서 도시하고 있는 바와 같이, 금형 몸체(101) 내부에 합성을 위한 원료분말(A)을 장입하고, 상기 금형 몸체(101)의 상부와 하부에 각각 전극을 형성하되, 상기 전극은 상기 원료분말을 고정하고 통전을 유도하는 금형커버(102, 103)와 접촉되어, 상기 각 전극에 인가되는 전원에 의해 원료분말(A)이 가열됨과 동시에 합성이 진행되도록 하는 것이다.

[0004] 이와 같은 종래의 방법에서는 합성 분말의 양을 늘리기 위해서는 금형의 내경을 증가시켜서 금형 내로 투입되는 원료 분말의 양을 증가시켜야 하나, 그 경우 합성 분말 내부에 반응이 완결되지 않는 부분이 형성되는 문제점이 발생한다. 이는 가열이 주로 금형 벽면에서 이루어 지기 때문에 관체 내경을 확대시킬 경우 금형 벽으로부터 어느 이상 거리가 떨어진 원료분말이 합성을 위한 충분한 가열을 받지 못하여 합성이 불완전해지기 때문이다.

[0005] 또한 합성 도중 강한 발열반응이 일어나는 원료는 금형의 직경이 너무 클 경우 원료 내부에서 발생한 반응열이 금형 벽면을 통하여 빠져나가지 못하고 원료분말 내부에 갇히기 때문에 원료분말 중앙부분이 과열에 의한 과대입성장, 부분적인 분해 및 용융현상이 발생하는 문제점이 있었다.

[0006] 금형 내부의 이러한 미반응 또는 과열지역의 형성은 합성분말의 균일성을 저하시키기 때문에 종래의 금형 시스템을 사용하는 경우 양질의 분말 합성을 위해서는 금형의 내경을 임계값 이상 키울 수 없으며, 따라서 1회당 분말의 합성량에 한계가 있는 문제가 있었다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명은 전술한 바와 같은 문제점을 해결하기 위하여 안출된 것으로서, 본 발명은 스파크 플라즈마 소결방법에 있어서, 종래의 금형과 달리 금형 내부에 원료분말이 장입되는 관체를 복수로 형성시킴으로써 금형 벽과 특정 지점의 원료 분말간 거리가 지나치게 멀어지지 않으면서도 종래의 금형에 비하여 1회당 보다 대량의 분말 합성이 가능하도록 하는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 합성용 금형을 제공하는 것을 목적으로 한다.

[0008] 또한, 본 발명은 관체의 직경방향으로 크기를 크게 하여 관체의 중심부에 존재하는 분말에 대한 가열온도가 합성에 적합한 온도가 되도록 유지하기 위하여 금형을 과도하게 가열하여야 하는 대신, 관체의 높이 방향으로 선택적으로 금형의 크기를 키움으로써, 합성을 위한 원료분말의 증가시 금형에 인가되는 전류 및 전압의 증가 혹은 전극의 과도한 가열 없이도 대량의 분말을 합성할 수 있는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 합성용 금형을 제공하는 것을 다른 목적으로 한다.

[0009] 또한 본 발명은 금형 내에 원료분말이 장입되는 관체를 복수로 형성시킬 경우 발생하는 불필요한 금형 몸체의 재료 단면적을 최대한 작게 설계함으로써 분말 합성을 위한 전류 및 전압의 양을 최소화시키는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 합성용 금형을 제공하는 것을 또 다른 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0010] 본 발명은 전술한 바와 같은 목적을 달성하기 위하여, 스파크 플라즈마 소결을 적용하기 위한 금형 시스템에 있어서, 내부에 세라믹 분말 합성을 위한 원료분말이 장입되는 두개 이상의 관체를 포함하는 금형 몸체; 및 상기 금형몸체의 상부와 하부에 각각 접촉되는 한 쌍의 금형 커버;를 포함하여 구성되는 스파크 플라즈마 소결에 의한 세라믹 분말 합성용 금형을 제공한다.

[0011] 상기 금형은 금형의 높이를 조절함으로써 스파크 플라즈마 소결을 위한 원료의 양을 조절하는 것이 바람직하다.

[0012] 상기 금형은 복수의 관체 사이에 적어도 하나의 가공부가 형성되어, 금형 몸체의 단면적을 줄임으로써 분말 합성을 위한 전류 및 전압의 양을 최소화하는 것이 바람직하다.

[0013] 상기 가공부는 금형 몸체의 내부 또는 외주부에 형성되는 것이 바람직하다.

[0014] 상기 관체 형상의 금형 몸체는 그 외주부 또는 내주부의 횡축 단면이 원형, 타원형, 다각형 중 선택되는 적어도 어느 하나인 것이 바람직하다.

[0015] 상기 관체의 내경은 2 ~ 4 cm의 범위인 것이 바람직하다.

발명의 효과

[0016] 이상과 같은 본 발명에 따르면, 세라믹 분말을 스파크 플라즈마 법으로 합성함에 있어서, 기존의 방법으로는 불가능한 정도의 대량 분말을 균일하게 합성할 수 있는 효과가 기대된다.

[0017] 또한, 본 발명을 통하여 종래의 한 개의 관체로 이루어진 금형에 비하여 재료 단면적이 보다 넓은 금형을 사용함으로써 종래의 금형에 비하여 낮은 온도에서 가열함에도 불구하고 분말합성이 충분히 이루어지며, 이에 의하여 기존 보다 더 미세한 분말을 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

[0018] 또한, 본 발명은 금형 몸체부의 재료 단면적을 최대한 축소함으로써 동일한 양의 분말 합성 시 더 적은 양의 전기를 공급함에도 불구하고 금형 몸체가 용이하게 가열되는 반면 전극부의 가열은 최대한 억제할 수 있도록 하여 소비전력을 절감하며, 따라서 분말 합성시 종래의 방법보다 더 고온 및 장시간을 유지할 수 있도록 조건설정이 가능하여 작업의 유연성을 높일 수 있는 작용효과가 기대된다.

도면의 간단한 설명

[0019] 도 1은 종래의 스파크 플라즈마 소결방법에 의한 분말합성용 금형에 관한 상하 단면도,

도 2는 본 발명의 일 실시예에 의한 금형 중 금형 몸체와 금형 커버에 관한 분해 사시도,

도 3은 본 발명의 일 실시예에 의한 7개의 관체를 갖는 금형 몸체 형상의 단면도,

도 4는 종래의 금형 시스템으로서 4cm 직경의 단일 관체를 갖는 금형과 본 발명의 일 실시예에 의한 2cm 직경의 관체 4개를 갖는 금형으로 각각 합성한 분말의 사진,

도 5는 종래의 금형 시스템으로서 5cm 직경의 단일 관체를 갖는 금형을 이용하여 1550℃에서 30분간 합성한 분말들 중 (a) 몰드 중심부 (b) 몰드 외각에 형성된 분말 형상을 나타내는 사진,

도 6은 종래의 금형 시스템으로서 2cm 직경의 단일 관체를 갖는 금형을 이용하여 승온하면서 합성하였을 때 반응 완료지역의 형성을 보여주는 모식도,

도 7은 종래의 금형 시스템으로서 2cm 직경의 단일 관체를 갖는 금형과, 본 발명의 일 실시예에 의한 3cm 직경의 관체 4개를 갖는 금형을 사용하여 합성된 Al_4SiC_4 분말의 X선 분석도, (a) 단일관체 금형, 1525℃에서 30분간 합성한 것, 녹색 분말 (b) 단일관체 금형, 1525℃에서 30분간 합성한 것, 노란색 분말, (c) 관체 4개 금형, 1300℃에서 5분간 합성한 것, 노란색 분말,

도 8은 단일 관체로 4cm(내경) × 4cm(높이)인 금형을 사용한 경우 금형 벽두께 변화에 따른 SPS 전극의 가열정도 (a) 두께 3mm, 1350℃ 승온 직후, (b) 두께 3mm, 1450℃에서 5분간 유지한 것 및 (c) 두께 5mm, 1350℃ 승온 직후,

도 9는 단일 관체로 4cm (내경) × 4cm (높이)인 금형의 벽 두께 변화 시 1350℃에서 5분 합성 후 얻어진 시편의 모식도,

도 10은 관체의 직경 및 높이가 동일한 상태에서 몰드의 벽 두께를 변화시킬 경우 원료분말들의 합성 시 발생하는 반응열이 나타나는 온도,

도 11은 종래의 금형 시스템으로서 2cm 직경의 단일 관체를 갖는 금형과 본 발명의 일 실시예에 의한 2cm 직경의 관체 4개를 갖는 금형을 사용하여 합성된 Al_4SiC_4 분말의 미세구조(여기서, (a),(b)는 단일관체로서 1550℃에서 30분간 합성된 것이며, (c),(d)는 4개 관체로서 1350℃에서 10분간 합성된 것),

도 12는 본 발명의 일 실시예에 의한 4개의 관체를 갖는 금형으로 (a) 단면적 최소화 설계 수행 전 및 (b) 단면적 최소화 설계 수행 후의 단면적 형상을 각각 나타낸 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0020] 이하, 본 발명을 첨부되는 도면을 기초로 보다 상세히 설명하기로 한다.

[0021] 본 발명은 하나의 금형 몸체에 적어도 두개 이상의 관체를 형성하여 스파크 플라즈마 소결공정을 수행한다는 점, 금형 몸체 내부에 형성되는 관체는 넓이에 비하여 높이가 높은 장경비를 갖게 함으로써 합성하고자 하는 원료분말 양의 증가에 따라 합성을 위한 전압과 전류 및 금형 가열온도가 증가하는 현상을 억제한다는 점, 종래에 비하여 여러개의 내부 관체를 가지므로 금형의 단면적이 전체적으로 증가하도록 하되, 합성 분말의 양적 증가에 따라 전류 및 전압의 인가량의 증가와 전극의 과열을 최대한 억제하고, 고온공정의 안정화를 이루기 위하여 단면적을 가급적 적절하게 조절하도록 한다는 점에 특징이 있으며, 이를 본 발명의 구성에 의해 구현하였음을 주지하여야 한다. 이러한 단면적의 조절은 후술하는 바와 같이 금형에 가공부를 더 구비하도록 함으로써 구현하도록 하였다.

[0022] 도 2에서는 본 발명의 일 실시예에 의한 스파크 플라즈마 소결용 금형의 분해사시도를 나타내었는데, 도시된 바와 같이, 본 발명의 일 실시예에 의한 금형은 소기의 세라믹 합성분말을 제조하기 위하여 내부에 원료분말(A)을 장입할 수 있도록 하는 적어도 두개 이상의 관체를 갖는 금형 몸체(201)와, 상기 금형 몸체의 상, 하부에 착탈가능하게 결합되는 한 쌍의 금형 커버(202, 203)로 구성되며, 상기 한 쌍의 금형 커버를 상부 금형 커버와 하부 금형 커버로 명명하기로 한다.

[0023] 여기에서, 상기 관체형상의 금형 몸체는 그 형상에 있어서, 내주부 또는 외주부의 횡축 단면이 원형, 타원형, 또는 다각형 등으로 구성되며, 이러한 형상은 이에 한정되는 것으로 해석되지는 않고 보다 다양한 형상도 가능하다.

[0024] 도 3은 본 발명에 다른 실시예에 의한 금형에 관한 것으로서 도시된 바와 같이, 도 2와 같은 4개의 관체가 아닌 7개의 관체를 갖는 금형의 단면이다. 이와 같이 본 발명의 금형은 적어도 2개 이상의 관체를 금형 몸체에 구현한 것을 특징으로 한다.

[0025] 종래의 금형의 경우 금형 본체는 한 개의 관체를 내부에 포함하고 있는데, 사용되는 원료 분말의 종류에 따라 그 최대 직경(내경)에 차이가 존재하나, 관체의 직경(내경)이 어느 값 이상 증가할 경우, 관체의 중심부에 위치한 분말의 경우 관체와 인접한 분말에 비하여 관체에 의한 가열효과가 상대적으로 감소되어 전체적으로 분말의 합성상태가 불균일해진다. 다만, 합성시 발열반응을 일으키는 원료분말의 경우, 부피가 어느 이상으로 커질 경우 관체에 인접한 분말은 관체를 따라 열전달이 가능하여 분말 내부가 과열될 우려가 적으나, 합성 대상 분말이 관체와 멀어질수록 발열반응에 의해 발생된 열을 효과적으로 배출하지 못하여 그 부분이 과열됨으로써 전체적으로 분말의 합성상태가 불균일해질 수도 있다. 즉, 발열반응을 일으키지 않는 분말의 경우, 관체와 인접한 분말에 대한 가열효과가 관체 내부에 대한 가열효과에 비하여 상대적으로 우수하므로 관체와 인접한 분말의 합성이 먼저 완료되므로, 관체 내부의 분말은 미반응상태로 남아있게 되고, 반대로 발열반응을 일으키는 분말의 경우, 관체와 인접한 분말은 관체를 통해서 열전달되어 과열되지 않으나, 관체 내부의 분말은 관체와 멀어져 관체를 통한 열전달이 일어나지 않으므로 관체 내부에 축열되는 결과 과열되어 관체 내부의 분말이 먼저 합성되게 된다. 즉, 분말의 종류에 따라서 관체와 인접한 부분과 관체 내부에 존재하는 분말간의 합성의 불균일성이 야기되는 것이다.

[0026] 따라서 도 2 및 도 3에서와 같이 분말의 합성이 균일하게 이루어지도록 관체의 내경을 너무 크게 하지 않으면서 단일 관체에서 합성되는 양보다 대량으로 균일한 분말합성이 가능하도록 관체를 복수로 형성한 것이다. 따라서 본 발명은 종래의 단일의 관체를 단지 복수의 관체로 단순개량한 것이 아니며, 이와 같은 복수의 관체형성과 분말 합성의 균일성, 1회당 분말합성의 양의 유기적 관계를 고려하여 본 발명의 특징을 파악하여야 하며, 이로부터 볼 때, 본 발명은 관체를 복수로 형성함으로써 단일관체에 의해서는 도저히 도출될 수 없는 새롭고 진보된 합성결과를 도출할 수 있는 것이다.

[0027] 도 4에 관체의 직경 증가에 따른 합성 분말의 형상을 보여준다. Al_4SiC_4를 합성대상 분말로 하였을 때, 관체 직경이 2㎝인 단일 관체를 구비하는 금형의 경우 합성온도의 상승에 따라서 균일한 원료분말이 합성된 반면, 관체 직경이 4㎝인 단일 관체를 구비하는 금형의 경우 합성된 분말 중심부에 불균일 영역이 발생하였으며, 이러한 불균일 문제는 합성온도를 올리거나 유지시간을 증가시키는 방법으로는 제거할 수 없었다(도 4 (a)).

[0028] 합성대상 분말의 양을 감안하였을 때, 본 발명의 일 실시예에 의한 금형(200)의 경우 직경(내경)이 2㎝인 관체 4개를 포함하는데, 이를 이용하여 관체 직경(내경)이 4㎝인 단일관체를 통해 합성될 수 있는 분말보다 더 균일하게 합성할 수 있었다(도 4 (b)). 즉, 관체의 내경을 줄이는 대신 관체의 숫자를 늘려 합성량을 늘리면서도 합성의 균일도를 동시에 구유하도록 하였다.

[0029] 후술하겠지만, 복수의 관체를 갖는 본 발명에 의한 금형에 있어서, 관체의 내경은 바람직하게는 2 ~ 4cm의 범위 내에서 결정되는 것이 좋은데, 이는 종래의 금형을 이용하는 경우와 비교하여 합성온도의 저하, 합성량의 증가, 합성의 균일도 확보의 모든 관점에서 위와 같은 범위의 관체 내경이 바람직하다는 뜻이며, 2cm 이하의 내경을 갖는 관체의 경우에는 합성량의 면에서 효율적이지 못하고, 4cm 이상의 내경을 갖는 관체의 경우에는 합성의 불균일성을 야기하여 합성분말의 대량생산이라는 목적을 달성할 수 없다. 따라서 위와 같은 관체 내경의 범위는 그 임계적 의의를 갖는다.

[0030] 도 5는 관체 직경 5cm인 단일 관체를 구비하는 금형을 사용하여 1550℃에서 30분간 합성한 분말의 미세구조를 보여준다. 위 분말은 발열반응을 일으키는 분말에 대한 것으로서, 발열반응에 의한 축열효과로 관체 가운데(내부) 부분의 분말은 비교적 균일하게 합성이 되었으나, 관체 가운데(내부, 중심부) 부분의 분말의 합성이 완료되는 시점에서의 관체와 인접한 분말에는 미반응된 잔류 카본블랙(carbon black)이 미분말 형태로 잔류함을 알 수 있었다.

[0031] 종래의 금형과 본 발명에 의한 금형의 작업성을 비교하기 위하여 아래와 같이 실험하였다. 종래의 2cm 직경의 단일 관체를 구비하는 금형과, 본 발명에 의한 2cm 직경의 4개의 관체를 포함하는 금형을 분당 50℃의 속도로 승온하여 1350 ~ 1575℃의 온도에서 5 ~ 30분간 가열한 후 금형 몸체에 장입된 Al-Si-C 혼합 분말의 Al_4SiC_4 합성 정도를 각각 조사하였다. 여기서, 종래의 금형은 본 발명의 금형에 비하여 상대적으로 높은 온도에서 합성하였으며, 위 온도범위에서 상한은 종래의 금형을 사용하여 합성한 경우의 합성온도, 하한의 경우 본 발명의 금형을 사용하여 합성한 경우의 합성온도를 대표한다.

[0032] 그 결과, 도 6에서 나타낸 바와 같이, 종래의 금형을 사용하는 경우 1575℃의 온도에서 합성한 후에도 관체 내부의 벽면 부근에서 미반응된 분말이 일부 검출된 반면, 본 발명에 의한 금형을 사용하는 경우 종래의 금형보다 4배 많은 분말을 동시에 합성함에도 불구하고 1350℃의 합성온도에서도 미반응층이 거의 형성되지 않은 균일한 합성 분말을 얻을 수 있었다. 이로써, 본 발명에 의한 금형을 사용하는 경우, 보다 대량의 분말을 저온에서 "균일하게" 합성할 수 있음을 알 수 있었다. 기실 단일 관체의 경우 합성온도를 상승시킴으로써 균일한 합성도를 갖는 합성분말의 제조가 가능하기는 하나, 1575℃라는 높은 합성온도는 자칫 장비의 과열의 문제점을 야기할 수 있으며, 따라서 장비의 손상, 고장의 원인이 될 수 있으므로, 합성온도의 저하는 이러한 측면에서 매우 장려되어야 하고, 이에 분말의 합성온도를 낮출 수 있었던 본 발명의 금형 구조는 그 자체로 특징이 있다.

[0033] 이와 같은 합성온도 저하 효과를 뒷받침하기 위하여 도 7에서는 본 발명의 일 실시예에 의한 직경 3cm의 관체 4개를 포함하는 금형을 사용하여 1250℃의 온도에서 합성한 Al_4SC_4와 종래의 직경 2cm 단일 관체를 구비하는 금형을 사용하여 1525℃의 온도에서 30분간 가열하여 합성한 분말의 X선 분석결과를 각각 나타내었다. 도 6에 도시된 바와 같이 기존의 관체 사용시에는 1525℃ 합성 후 내부에는 노란색 분말이 형성된 반면 외부에는 녹색의 분말이 형성되었으며, 합성온도를 높일 경우 녹색 분말의 양이 감소하여 1600℃에서 30분간 합성 후에는 균일한 노란색 합성 분말을 얻을 수 있었다. 이에 비하여 본 실시예에 따른 4개의 관체를 사용한 경우 1250℃ 합성 후에도 균일한 노란색 합성 분말을 얻을 수 있었다. 종래와 같은 단일 관체를 사용할 경우 합성온도를 1525℃로 하여 주변부에서 얻어진 녹색의 분말에서는 미반응 이차상들이 존재함을 알 수 있었다 (도 7 (a)). 이와 대조적으로, 상기 노란색 분말의 경우 미반응 원료분말이나 분해물이 존재하지 않는 균일한 단상의 Al_4SiC_4가 합성됨을 알 수 있었다(도 7(b), (c)).

[0034] 본 실시예에 의한 새로운 금형 사용 시 합성온도를 저하시킬 수 있었던 바, 이를 설명하기 위하여 다음과 같은 다양한 실험을 수행하였다.

[0035] 표 1은 금형의 단면적과 합성온도의 관계를 알아보기 위한 것으로서, 표 1에서는 단일 관체의 직경 및 높이를 동일하게 유지하고 금형의 벽 두께를 변화시킬 경우 가열을 위하여 필요한 전압 및 전류량을 나타내었다.

표 1

[0036] - 금형의 두께 차이에 의한 동일 온도에서의 전압/전류 차이

온도(℃)	40mm ×40mm ×3mm	40mm ×40mm ×5mm	40mm ×40mm ×7mm
	전압 / 전류	전압 / 전류	전압 / 전류
800	2.8V / 1100mA	3.0V / 1570mA	3.2V / 1600mA

1000	2.9V / 1130mA	3.1V / 1650mA	3.3V / 1700mA
1200	3.2V / 1200mA	3.2V / 1800mA	3.4V / 1980mA
1350	3.2V / 1230mA	3.4V / 1870mA	3.5V / 2100mA

[0037] 여기서, 예를 들어 40㎜ × 40㎜ × 3㎜는 관체 직경(내경) × 높이 × 두께를 의미한다.

[0038] 위 표 1로부터 알 수 있는 바와 같이, 관체의 부피가 동일하기 때문에 합성되는 분말의 총량은 동일함에도 불구하고 금형 벽 두께 증가 시 전압 및 전류량이 증가함을 알 수 있었다. 이러한 전력량의 증가에 의하여 도 8과 같이 두꺼운 금형을 사용할 경우 SPS 전극부위의 가열이 더 쉽게 일어났다.

[0039] 이러한 전극부위의 가열에 의하여 관체 상, 하부에 존재하는 원료 분말들은 추가적인 에너지를 얻게 된다. 따라서 금형의 벽 두께를 증가시켜 금형 전체의 단면적을 증가시키는 것과 같은 원리로 본 발명에서와 같이 여러 개의 관체를 사용하거나 관체의 직경을 늘리는 등의 설계로 금형 전체의 단면적이 늘어날 경우 도 9에서 알 수 있는 바와 같이 기존의 방법인 작은 직경을 갖는 단일 관체를 포함하는 금형을 사용할 경우 균일한 합성이 상대적으로 어려웠던 관체 상, 하부 분말의 합성이 더 균일하게 일어날 수 있다. 따라서, 금형의 단면적을 과열되지 않는 범위에서 적절하게 증가시켜주는 것, 즉 하나의 금형 몸체에 관체를 보다 많이 생성하는 것은 분말의 균일한 합성을 위한 것으로서, 본 발명의 특징으로서 매우 바람직한 것이다. 또한, 이와 같이 분말이 추가적인 에너지를 얻음으로써 에너지 전달의 효율이 향상되어 온도를 불필요하게 상승시키지 아니하여도 합성이 가능하므로 합성온도의 저하효과까지 달성가능한 것이다.

[0040] 한편, 도 9의 그림에서 관체의 직경이 4㎝로 비교적 클 경우 내부에 반응이 덜 일어난 지역이 존재함을 알 수 있으며, 이는 관체 내경의 임계적 의의에 관한 전술한 내용을 명백히 뒷받침 해주고 있는 것이다.

[0041] 도 10은 단일 관체의 직경 및 높이가 동일한 상태에서 금형의 벽 두께를 변화시킬 경우 승온 도중 원료분말들의 발열합성에 의한 반응열이 발현되는 온도를 나타내며, 금형의 두께 증가는 발열반응이 일어나는 온도에 영향을 미치지 않았다. 이로부터 금형의 두께 변화는 분말 내부온도에는 큰 영향을 미치지 않음을 알 수 있었다.

[0042] 다음 실험으로는 표 2와 같이 한 개의 관체로 이루어진 금형을 이용하여 그 관체의 직경을 증가시키면서 전류 및 전압의 증가량을 관찰하였다.

표 2

[0043] - 금형 관체의 직경 차이에 의한 동일 온도에서의 전압/전류 차이

온도 (℃)	40㎜×40㎜×3㎜	50㎜×40㎜×3㎜
	전압 (V)/ 전류 (A)	전압 (V)/ 전류 (A)
800	3.10 / 1013	4.10 / 893
900	3.16 / 1059	4.28 / 989
1000	3.23 / 1128	4.43 / 1074
1100	3.34 / 1201	4.51 / 1180
1200	3.35 / 1228	4.58 / 1301
1300	3.53 / 1355	4.98 / 1411
1400	3.64 / 1435	5.01 / 1469
1500, 1분미만	3.69 / 1506	5.04 / 1528
1500, 5분	3.53 / 1455	4.55 / 1525
1500, 10분	3.54 / 1443	4.56 / 1528

[0044] 여기서, 예를 들어 40㎜ × 40㎜ × 3㎜는 관체 직경(내경) × 높이 × 두께를 의미한다.

[0045] 위 표 2로부터 알 수 있는 바와 같이, 관체의 직경(내경)을 증가시킬 경우 인가되는 전압 및 전류값이 증가하였다. 이는 표 1의 결과와 마찬가지로 관체 직경 증가 시 금형 전체의 단면적이 커지기 때문이다. 이 결과로부터 큰 직경의 관체를 사용하는 경우 역시 전극이 더 높은 온도로 가열됨을 알 수 있었다.

[0046] 이러한 결과들로부터 본 발명에 의한 새로운 금형 사용 시 기존의 소량 합성용 단일 관체 금형 보다 합성온도가 낮고 균일한 분말을 얻을 수 있는 다음과 같은 이유를 알 수 있었다.

[0047] 1. 관체의 개수가 증가하면 금형 전체의 단면적도 증가하며 이에 의해 종래의 금형보다 동일 합성온도에서 더

많은 전압과 전류가 인가된다. 이에 의해 유발되는 전극의 가열이 관체 상, 하부에 존재하는 분말의 합성을 촉진시킨다.

[0048] 2. 본 발명에 의하여 새로 설계된 금형은 기존 금형 보다 동일 합성온도에서 더 많은 전압과 전류가 인가되나, 이는 원료의 반응 시작온도에는 영향을 미치지 않는다. 그럼에도 불구하고 전체적으로 균일하게 합성된 분말을 얻기 위한 온도 조건은 뚜렷히 감소하기 때문에 통전성 원료분말에 더 많이 인가되는 전압 및 전류에 의하여 합성의 균일성이 촉진된다.

[0049] 3. 합성량을 증가시키기 위하여 단순히 관체 직경만 늘리는 기존의 방법에 비하여 관체 개수 증가에 의하여 재료 단면적이 보다 넓은 금형을 사용함으로써 관체의 가열면적을 늘리고, 따라서 이와 같이 가열면적이 넓어진 관체로부터 보다 효과적으로 합성용 분말에 열전달이 가능하게 되므로 동일한 합성량일 때 종래의 단일 관체형 금형에 비하여 분말합성이 균일하게 이루어질 수 있는 것이다.

[0050] 도 11은 본 발명의 일 실시예에 의한 금형을 사용하여 1350℃의 온도에서 10분간 가열하여 합성한 Al_4SC_4와 종래의 금형을 사용하여 1550℃의 온도에서 30분간 가열하여 합성한 분말의 미세구조를 나타내었다. 종래의 금형에 비하여 본 발명의 일 실시예에 의한 금형을 사용할 경우, 합성량이 4배 더 많음에도 불구하고 합성된 원료분말이 더 미세함을 알 수 있는데, 이는 기존의 금형을 사용한 경우보다 본 발명에서 제안된 금형을 사용할 경우 합성온도가 200℃ 낮아 합성된 분말의 입성장이 상대적으로 덜 일어났기 때문이다.

[0051] 이로부터 본 발명은 입성장이 억제된 균일한 합성분말을 경제적으로 제조할 수 있는 우수한 발명임을 알 수 있다.

[0052] 표 3에서는 금형의 높이변화에 따른 소요 전류, 전압의 양을 나타내었다.

표 3

[0053] - 금형의 높이 차이에 의한 동일 온도에서의 전압/전류 차이

온도 (℃)	40㎜×40㎜×3㎜	40㎜×80㎜×3㎜
	전압 (V)/ 전류 (A)	전압 (V)/ 전류 (A)
800	3.10 / 1013	2.98 / 676
900	3.16 / 1059	3.03 / 728
1000	3.23 / 1128	3.11 / 774
1100	3.34 / 1201	3.19 / 820
1200	3.35 / 1228	3.23 / 856
1300	3.53 / 1355	3.40 / 910
1400	3.64 / 1435	3.59 / 966
1500, 1분미만	3.69 / 1506	3.71 / 1005
1500, 5분	3.53 / 1455	3.61 / 971
1500, 10분	3.54 / 1443	3.57 / 964
1500, 30분	3.52 / 1447	3.61 / 972

[0054] 여기서, 예를 들어 40㎜ × 40㎜ × 3㎜는 관체 직경(내경) × 높이 × 두께를 의미한다.

[0055] 위 표 3으로부터 알 수 있는 바와 같이, 금형의 높이를 4㎝에서 8㎝로 두배 늘릴 경우 합성 분말의 양은 두배로 늘어나나, 동일한 온도로 가열할 경우 인가되는 전류 및 전압의 양은 금형 높이가 4㎝인 경우에 비하여 오히려 감소하였다. 즉, 전체적으로 균일하게 합성된 분말을 얻기 위해서는 높이 4㎝인 금형의 경우에는 1350℃가 필요한 반면, 높이가 8㎝인 금형은 이보다 약간 높은 1400℃가 필요하였으며, 이에 의한 추가적인 전압 및 전력 상승을 고려하더라도 인가된 전력의 총량은 감소하였다. 이와 같은 현상은 실험적으로 나타난 것으로서 그 원인은 명확하지는 않으나, 합성 대상 분말의 양은 두배로 늘어났음에도 불구하고 합성에 필요한 온도는 거의 변화가 없었으며, 이는 합성 대상분말의 발열반응에 의한 합성온도 상승의 기여분이 금형 높이가 4㎝인 경우보다 8㎝인 경우에 더 높아져서 상대적으로 적은 전력량을 소요로 한 것이 아닌가 판단된다.

[0056] 이로부터 본 발명에 의하여 관체의 넓이 방향이 아닌 높이 방향으로 선택적으로 금형의 크기를 늘릴 경우 합성

을 위하여 요구되는 전력의 총량을 감소시키면서도 합성 분말의 양을 효과적으로 늘릴 수 있음을 알 수 있었다.

[0057] 도 12는 본 발명의 일 실시예에 의한 3㎝ 내경의 관체 4개를 포함하는 금형에 있어서, 그 설계 시 단면적을 최소화시킨 경우와 그렇지 않은 경우의 단면 형상을 보여준다. 즉, 도 12(a)와 (b)의 차이는 도 12(a)의 경우 금형 내부에 관체만을 구비하도록 한 것인 반면, 도 12(b)의 경우 가공부(1201)를 금형 몸체(201)에 도입함으로써 분말의 가열에 직접 기여하지 않는 금형재료를 최대한 제거해 주는 설계를 추가로 도입한 것이다.

[0058] 이러한 설계를 도입한 이유로서 표 1에서 나타낸 바와 같이 관체의 직경 및 부피를 동일하게 유지할 경우에도 금형의 두께를 증가시킬 경우 가열을 위하여 더 많은 전압 및 전류를 필요로 하게 되며, 이에 의하여 도 9와 같이 SPS 전극부위의 가열이 더 쉽게 일어나기 때문이다. 전극 부위가 가열될 경우 관체 상, 하부 분말의 합성을 촉진시키는 장점은 존재하나 고온의 합성온도가 필요할 경우 전극부위의 지나친 가열에 의하여 장비의 파손이 일어날 수 있는 단점이 존재한다.

[0059] 도 12(a)의 금형을 사용한 경우 승온 도중 금형과 접촉된 전극이 약 700℃ 이상으로 심하게 가열되었으며, 이로 인하여 목적온도(1350℃)에서 균일한 합성을 위한 유지시간을 가질 수 없었고, 목적온도 도달 후 바로 냉각을 수행하여야 했다. 이는 1회 합성의 분말양을 증가시키기 위하여 관체 직경을 2㎝에서 3㎝로 증가시킨 결과 전체 금형의 크기가 커졌기 때문이다. 그 결과 반응이 불균일하게 일어난 합성분말을 얻었다.

[0060] 이와 달리 도 12(b)의 금형을 사용할 경우 도 12(a)의 금형을 사용할 경우와 동일한 양의 분말을 합성함에도 불구하고 1350℃에서 더 적은 양의 전류와 전압이 요구되었으며 동 온도에서 10분간 유지할 경우에도 전극의 가열 상태가 약 600℃ 이하고, 도 12(a)의 금형을 사용하여 1350℃로 올린 직후 보다 양호함을 알 수 있었다. 그 결과 균일하게 합성이 진행된 분말을 얻을 수 있었다.

[0061] 기존에 금형의 두께를 얇게 함으로써 합성에 요구되는 전류 및 전압의 양을 감소시키는 발명은 보고되었다. 그러나 그 경우 한 개의 관체를 갖는 금형 벽의 두께를 전체적으로 감소시키는 데 한정되어 있다. 이에 비하여 본 발명에서는 한 개의 금형 내부에 여러 개의 관체가 존재할 경우 관체와 관체 사이 및 관체와 금형 외부 사이에 존재하는 금형 재료의 적절한 제거를 통하여 합성에 요구되는 전류 및 전압을 효과적으로 감소시키는데 그 특징이 있다.

[0062] 이러한 결과들로부터 알 수 있는 바와 같이, 본 발명에 의한 금형을 사용하면, 스파크 플라즈마 소결방법을 적용한 기존에 보고된 금형을 사용한 경우보다 더 낮은 온도에서 더 적은 에너지를 사용하면서 보다 많은 양의 분말을 합성할 수 있었다.

[0063] 아울러, 본 발명에 의한 금형을 사용하는 경우 종래의 금형을 사용하는 경우보다 합성온도의 감소에 의하여 입성장을 억제함으로써 보다 더 미세한 합성분말을 얻을 수 있는 장점도 있다.

[0064] 이상에서 실시예를 들어 본 발명을 더욱 상세하게 설명하였으나, 본 발명은 반드시 이러한 실시예로 국한되는 것이 아니고 본 발명의 기술사상을 벗어나지 않는 범위 내에서 다양하게 변형실시될 수 있다. 따라서, 본 발명에 개시된 실시예는 본 발명의 기술 사상을 한정하기 위한 것이 아니라 설명하기 위한 것이고, 이러한 실시예에 의하여 본 발명의 기술 사상의 범위가 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 보호 범위는 아래의 청구범위에 의하여 해석되어야 하며, 그와 동등한 범위 내에 있는 모든 기술 사상은 본 발명의 권리범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.

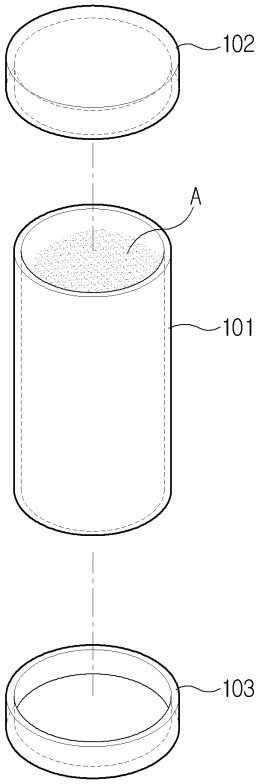
부호의 설명

[0065] 101, 201 : 금형 몸체 102, 103, 202, 203 : 금형 커버

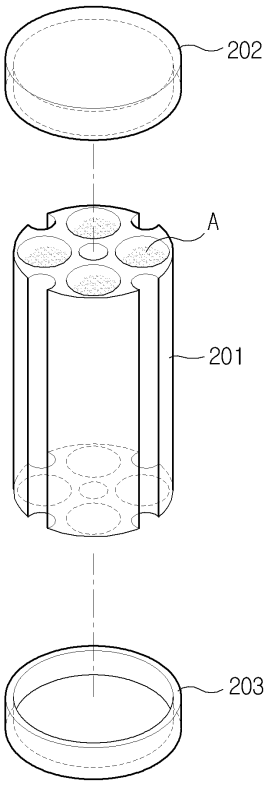
1201 : 가공부 A : 합성분말

도면

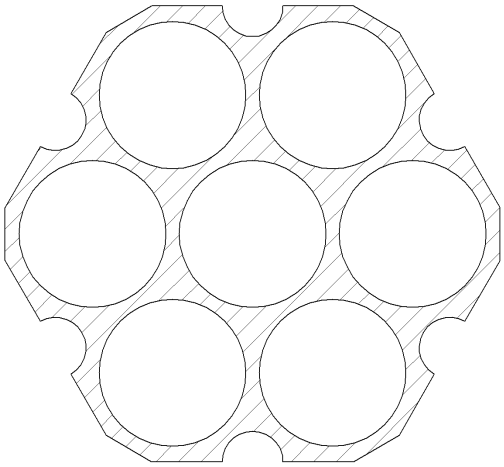
도면1



도면2



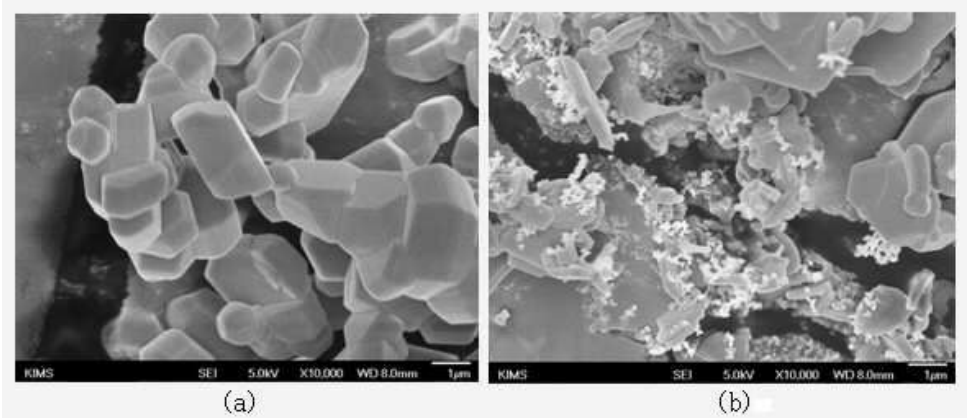
도면3



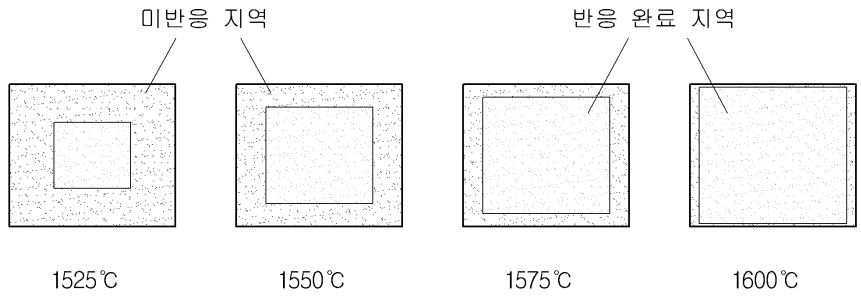
도면4


(a)
(b)

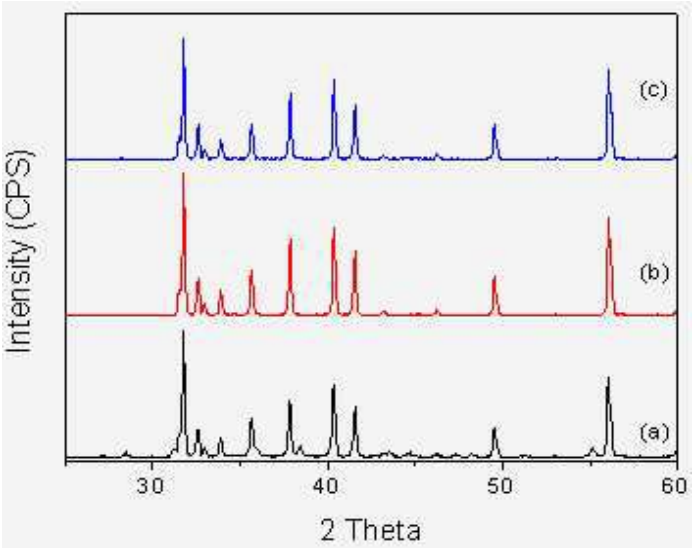
도면5


KIMS SEI 5.0kV X10,000 WD 8.0mm 1μm
KIMS SEI 5.0kV X10,000 WD 8.0mm 1μm
(a)
(b)

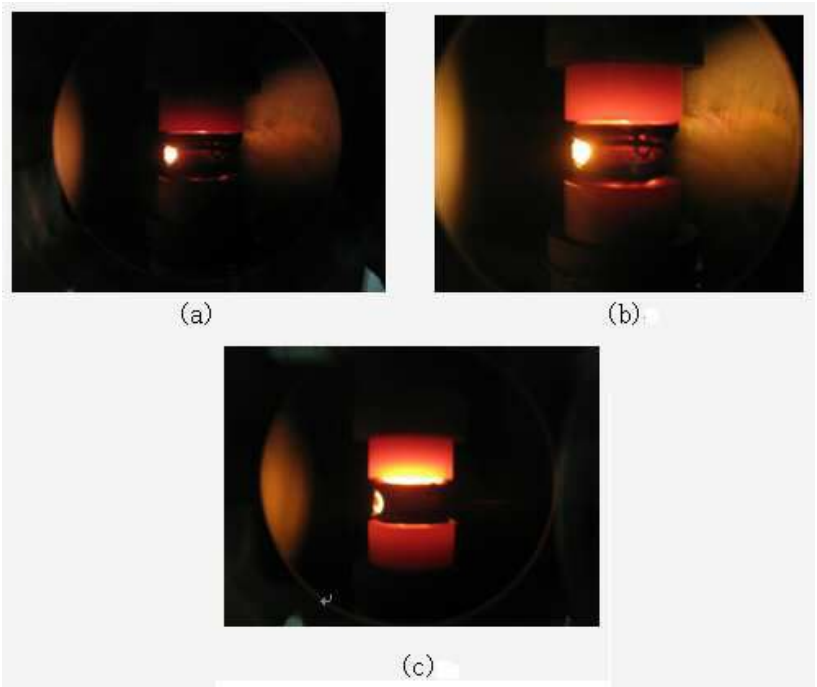
도면6


미반응 지역
반응 완료 지역
1525℃
1550℃
1575℃
1600℃

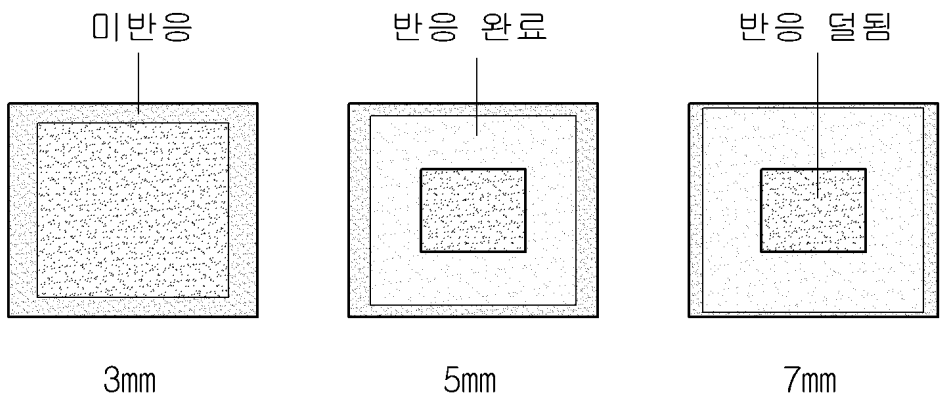
도면7


(c)
(b)
(a)
Intensity (CPS)
30
40
50
60
2 Theta

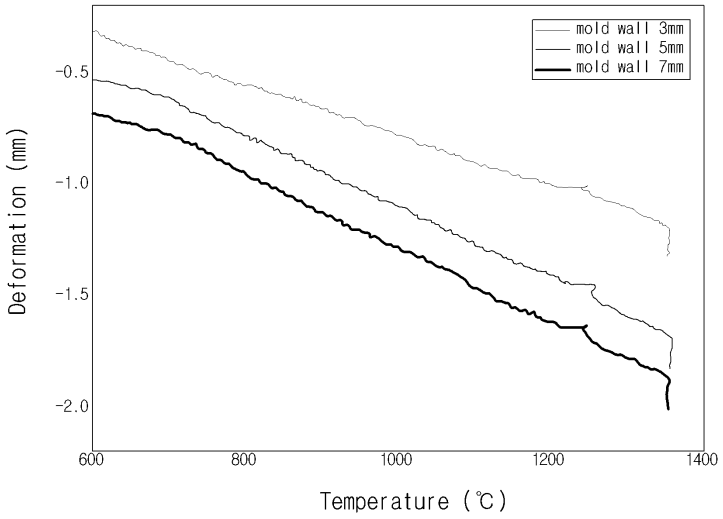
도면8


(a)
(b)
(c)

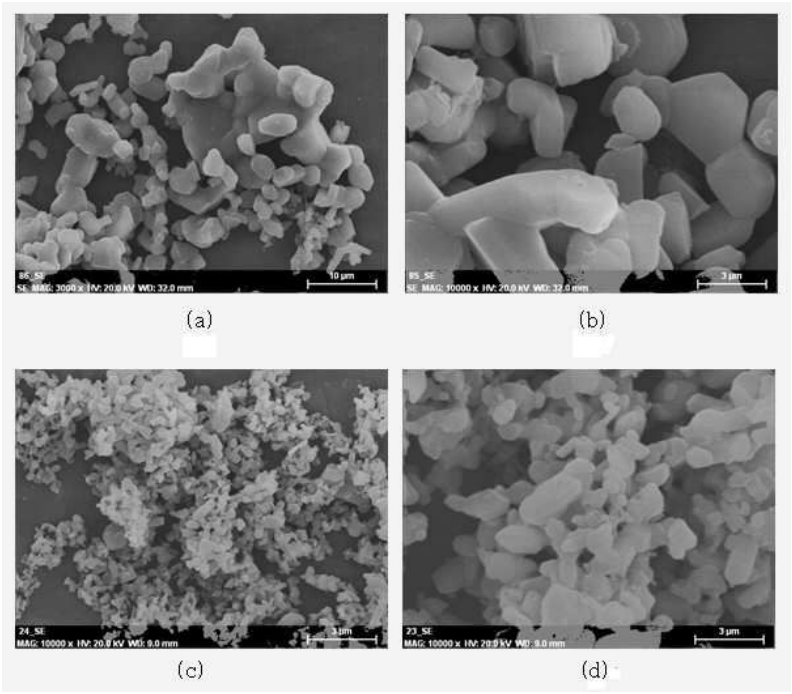
도면9


미반응
반응 완료
반응 덜됨
3mm
5mm
7mm

도면10


mold wall 3mm
mold wall 5mm
mold wall 7mm
Deformation (mm)
-0.5
-1.0
-1.5
-2.0
600
800
1000
1200
1400
Temperature (℃)

도면11



도면12

