(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0128204
(43) 공개일자 2023년09월04일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01F 5/02 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C01F 5/02 (2013.01)
C01P 2004/61 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2022-0025454
(22) 출원일자 2022년02월25일
심사청구일자 2022년02월25일

(71) 출원인
한국재료연구원
경상남도 창원시 성산구 창원대로 797 (상남동)
(72) 발명자
안철우
경상남도 창원시 성산구 삼정자로 79 유니온빌리지
한병동
경상남도 창원시 성산구 삼정자로 79(성주동, 유니온빌리지)
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인(유한) 대아

전체 청구항 수 : 총 12 항

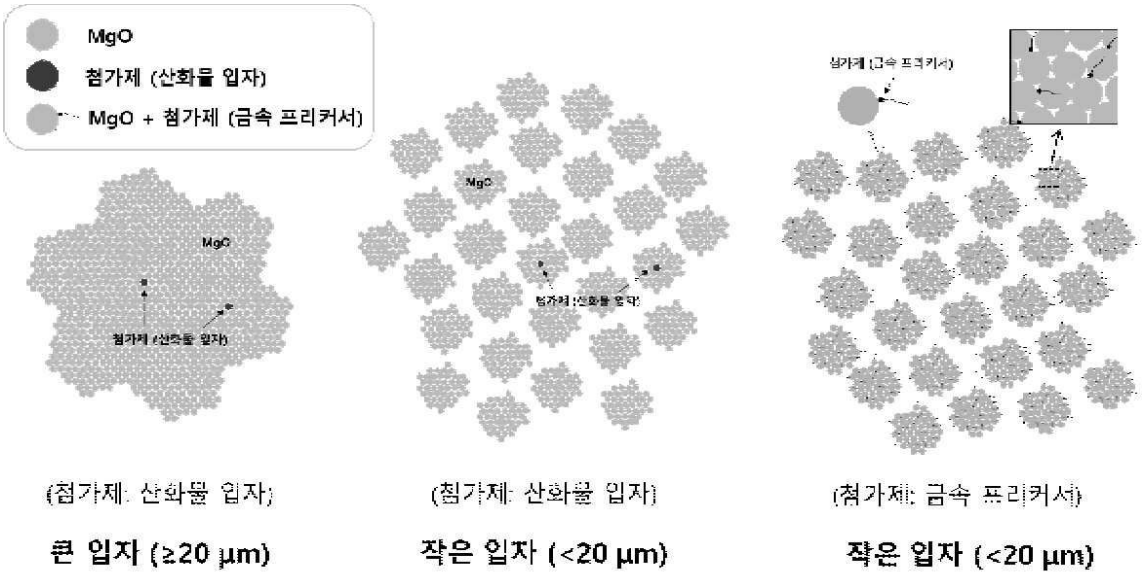
(54) 발명의 명칭 **MgO 소재 및 그 제조 방법**

(57) 요 약

내흡습성이 우수하고, 저온에서 소결 특성이 우수한 MgO 소재 및 그 제조 방법에 대하여 개시한다.

본 발명에 따른 본 발명에 따른 MgO 소재의 제조 방법은 (a) MgO 원료 분말에 금속 프리커서(precursor)와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계; (b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; 및 (c) 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

대 표 도 - 도1



(72) 발명자

최종진

부산광역시 해운대구 마린시티3로 51, 30층 101-3001호 (우동)

차현애

경상남도 창원시 의창구 창원천로94번길 19(대원동)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1711139454
과제번호	PNK7910
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	국가과학기술연구회
연구사업명	한국재료연구원 운영비지원사업
연구과제명	(KAL)미래형 저가 고열전도성 KIMS MgO TIM 제조 기술 개발(1/3)
기 여 율	1/1
과제수행기관명	한국재료연구원
연구기간	2021.03.01 ~ 2021.12.31

명 세 서

청구범위

청구항 1

(a) MgO 원료 분말에 금속 프리커서(precursor)와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계;

(b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; 및

(c) 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 2

(a) $Mg(OH)_2$ 원료 분말에 금속 프리커서(precursor)와 증류수를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계;

(b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; 및

(c) 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 (a) 단계에서, 금속 프리커서는 금속에 C, H, N, O, Cl, S 중 1종 이상의 원소가 결합된 화합물을 포함하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 (a) 단계에서, 금속 프리커서의 금속은 Ti, Nb, Zr, Ga, Mn, B, Fe, Sn, Mn, Si, V, Ta, Sb, Y, Eu, Er 및 Al 중 1종 이상을 포함하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 5

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 MgO 소재는 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 갖는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 (a) 단계에서, MgO 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 첨가하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 7

제2항에 있어서,

상기 (a) 단계에서, $Mg(OH)_2$ 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 첨가하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 8

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 (c) 단계에서, 상기 건조된 혼합물을 1000 ~ 1700℃에서 열처리하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 9

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 (c) 단계에서, MgO 분말 입자 표면에 MgO 분말 내부와 조성이 다른 수분 방어층을 형성하는 MgO 소재의 제조 방법.

청구항 10

MgO 분말 입자; 및

상기 MgO 분말 입자 표면에 배치된 수분 방어층을 포함하고,

상기 MgO 분말 입자는 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가지며,

85℃ 및 85% RH 조건에서 72시간 동안 방치한 후, 측정된 무게 증가율이 5% 이하인 MgO 소재.

청구항 11

제10항에 있어서,

상기 수분 방어층은 Ti, Nb, Zr, Ga, Mn, B, Fe, Sn, Mn, Si, V, Ta, Sb, Y, Eu, Er 및 Al 중 1종 이상을 포함하는 MgO 소재.

청구항 12

제10항에 있어서,

상기 MgO 분말 입자 내부의 조성과 상기 수분 방어층의 조성이 서로 다른 MgO 소재.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 내흡습성이 우수하고, 저온에서 소결 특성이 우수한 MgO 소재 및 그 제조 방법에 관한 것이다.

[0002]

배 경 기 술

[0003] 전자기기의 고성능화 및 소형화가 진행됨에 따라 전자기기의 내부에 장착된 전자부품도 고집적화가 되고 있다. 전자부품이 고집적화 될수록, 전자기기를 사용할 때 많은 열이 발생하게 된다. 발생된 열은 부품의 오작동, 기

판 열화 등을 일으켜 전자기기의 기능을 저하시키는 원인이 된다. 이에 따라 전자부품의 열을 외부로 방출하기 위해 방열 패키지가 사용되고 있다.

[0004] 방열 패키지는 고열전도성 절연 기판과 금속 히트 싱크 (Metal Heat Sink)로 이루어져 있다. 이종 재질간 열전달에 있어서 계면에서의 공기 및 이물질에 의한 열전달 특성이 저하되는 문제점을 개선하기 위해, 고열전도성 절연기판과 금속 히트 싱크 사이에는 방열 접착제인 열계면 소재(TIM: Thermal Interface Material)가 사용되고 있다.

[0005] 열계면 소재로는 폴리머와 열전도성 금속 입자, 또는 폴리머와 열전도성 세라믹 입자가 사용되고 있다. 열전도성 입자로는 직경이 20㎛ 이상인 큰 입자가 사용되고 있으며, 폴리머의 열전도도를 높이고 상기 큰 입자들 사이의 공극을 채워주기 위해 직경이 20㎛ 미만인 작은 입자도 함께 사용되고 있다.

[0006] 상용화된 열계면 소재를 보면, 직경이 20㎛ 미만인 작은 입자로서 Al_2O_3가 사용되고 있다. 하지만 Al_2O_3는 30 W/mK 이하의 낮은 열전도도를 가지며, 열계면 소재의 열전도도를 향상시키기에는 한계가 있다.

[0007] 따라서 열계면 소재를 구성하는 작은 입자로서, Al_2O_3를 대체할 수 있는 소재가 필요한 실정이다.

[0008]

발명의 내용

해결하려는 과제

[0009] 본 발명의 목적은 내흡습성이 우수하여 보관이 용이한 MgO 소재 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

[0010] 또한 본 발명의 목적은 열계면 소재용 세라믹 필러에 적용 가능한 MgO 소재 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

[0011] 또한 본 발명의 목적은 1500℃ 이하의 저온에서 치밀하게 소결되는 MgO 소재 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

[0012] 또한 본 발명의 목적은 열전도성이 우수하고 고품질을 나타내는 MgO 소재 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

[0013]

[0014] 본 발명의 목적들은 이상에서 언급한 목적으로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 본 발명의 다른 목적 및 장점들은 하기의 설명에 의해서 이해될 수 있고, 본 발명의 실시예에 의해 보다 분명하게 이해될 것이다. 또한, 본 발명의 목적 및 장점들은 특허 청구 범위에 나타낸 수단 및 그 조합에 의해 실현될 수 있음을 쉽게 알 수 있을 것이다.

[0015]

과제의 해결 수단

[0016] 본 발명에 따른 MgO 소재의 제조 방법은 (a) MgO 원료 분말에 금속 프리커서(precursor)와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계; (b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; 및 (c) 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

[0017]

[0018] 본 발명에 따른 MgO 소재의 제조 방법은 (a) $Mg(OH)_2$ 원료 분말에 금속 프리커서(precursor)와 증류수를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계; (b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; 및 (c) 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

[0019] 상기 (a) 단계에서, 금속 프리커서는 금속에 C, H, N, O, Cl, S 중 1종 이상의 원소가 결합된 화합물을 포함할 수 있다.

[0020] 상기 (a) 단계에서, MgO 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 첨가하거나, 또는 $Mg(OH)_2$ 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 첨가할 수 있다.

[0021] 제조된 MgO 소재는 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가질 수 있다.

[0022]

[0023] 본 발명에 따른 MgO 소재는 MgO 분말 입자; 및 상기 MgO 분말 입자 표면에 배치된 수분 방어층을 포함하고, 상기 MgO 분말 입자는 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가지며, 85℃ 및 85% RH 조건에서 72시간 동안 방치한 후, 측정된 무게 증가율이 5% 이하일 수 있다.

[0024] 상기 수분 방어층은 Ti, Nb, Zr, Ga, Mn, B, Fe, Sn, Mn, Si, V, Ta, Sb, Y, Eu, Er 및 Al 중 1종 이상을 포함할 수 있다.

[0025]

발명의 효과

[0026] 본 발명에 따르면 내흡습성이 우수하여 보관이 용이한 MgO 소재를 제조할 수 있다.

[0027] 또한 본 발명에 따르면 1500℃ 이하의 저온에서 치밀하게 소결되는 MgO 소재를 제조할 수 있다.

[0028] 또한 본 발명에 따르면 열전도성이 우수한 MgO 소재를 제조할 수 있다.

[0029] 또한 본 발명에서 제조된 고품질 MgO 소재를 열계면 소재(TIM)용 세라믹 필러에 적용할 수 있다.

[0030]

[0031] 상술한 효과와 더불어 본 발명의 구체적인 효과는 이하 발명을 실시하기 위한 구체적인 사항을 설명하면서 함께 기술한다.

[0032]

도면의 간단한 설명

[0033] 도 1은 MgO 분말 입자의 크기와 첨가제 형태에 따른 첨가제의 분산성을 보여주는 개략도이다.

도 2는 본 발명의 제조 방법에 따라 제조된 MgO 소재의 SEM 이미지이다.

도 3은 본 발명의 MgO 원료 분말에 프리커서 형태의 첨가제와 산화물 입자 형태의 첨가제를 첨가했을 때, 첨가제 함량(at%)에 따른 MgO 소재의 무게 증가율을 나타낸 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0034] 전술한 목적, 특징 및 장점은 첨부된 도면을 참조하여 상세하게 후술되며, 이에 따라 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 본 발명의 기술적 사상을 용이하게 실시할 수 있을 것이다. 본 발명을 설명함에 있어서 본 발명과 관련된 공지 기술에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 상세한 설명을 생략한다. 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명에 따른 바람직한 실시예를 상세히 설명하기로 한다. 도면에서 동일한 참조부호는 동일 또는 유사한 구성요소를 가리키는 것으로 사용된다.

[0035] 이하에서 구성요소의 "상부 (또는 하부)" 또는 구성요소의 "상 (또는 하)"에 임의의 구성이 배치된다는 것은, 임의의 구성이 상기 구성요소의 상면 (또는 하면)에 접하여 배치되는 것뿐만 아니라, 상기 구성요소와 상기 구성요소 상에 (또는 하에) 배치된 임의의 구성 사이에 다른 구성이 개재될 수 있음을 의미할 수 있다.

[0036] 또한 어떤 구성요소가 다른 구성요소에 "연결", "결합" 또는 "접속"된다고 기재된 경우, 상기 구성요소들은 서로 직접적으로 연결되거나 또는 접속될 수 있지만, 각 구성요소 사이에 다른 구성요소가 "개재"되거나, 각 구성요소가 다른 구성요소를 통해 "연결", "결합" 또는 "접속"될 수도 있는 것으로 이해되어야 할 것이다.

[0037] 이하에서는, 본 발명의 몇몇 실시예에 따른 MgO 소재 및 그 제조 방법을 설명하도록 한다.

[0038]

[0039] 열계면 소재(TIM)를 제조하는데 있어서, 열전도성 입자로서 직경이 큰 입자와 직경이 작은 입자를 섞어서 사용하고 있다.

[0040] 열계면 소재는 열전도성 입자와 함께 폴리머가 사용되며, 열전도성 입자 중 큰 입자의 직경은 20㎛ 이상을 나타내고, 작은 입자의 직경은 20㎛ 미만을 나타낸다. 열전도성 입자 중 작은 입자는 폴리머의 낮은 열전도도를 높이고, 큰 입자들 사이에 생긴 공극을 채워주면서 열계면 소재의 열전도 특성을 더욱 높이는 역할을 한다. 이에 따라, 열계면 소재를 제조하는데 있어서 직경이 20㎛ 미만인 작은 입자가 필수적으로 사용되고 있다.

[0041] 상용화된 열계면 소재는 작은 입자로서 주로 Al_2O_3를 사용하고 있는데, Al_2O_3는 열전도도가 낮은 단점이 있어, 열계면 소재의 열전도 특성을 더욱 향상시키는데 한계가 있음을 확인하였다.

[0042] 이러한 문제점을 개선하고자, 본 발명자는 작은 입자로서 Al_2O_3 대신 열전도성과 전기 절연성이 우수한 MgO를 선택하였다. 그리고 MgO의 흡습성 문제를 개선하기 위해, MgO 분말에 입자 형태의 소량의 첨가제를 분산시켜 열처리함으로써, MgO 분말 표면에 코팅막을 형성하려는 시도가 있었다.

[0043] 하지만, 20㎛ 미만의 MgO 입자 제조를 위해 MgO 원료 분말과 소량의 첨가제를 혼합할 때, 적은 첨가제 양으로 인해 20㎛ 미만의 MgO 입자 각각에 첨가제가 분산되는 게 어려워서 각각의 MgO 입자를 균일하게 코팅하는데 어려움 있다는 것을 확인하였다.

[0044] 이에 대해, 본 발명자는 직경이 작은 MgO 분말 입자의 흡습성 문제를 개선하기 위해, 첨가제의 분산성을 해결해야 한다고 생각했다.

[0045] 여러 가지 실험을 통해 연구한 결과, 본 발명자는 용매에 용해되는 금속 프리커서(precursor)를 MgO 분말에 첨가하여 건조와 열처리를 함으로써, 첨가제의 우수한 분산성에 의해 각각의 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층이 코팅된 것을 확인하였다.

[0046] 또한 20㎛ 미만의 MgO 입자 제조 시, 크기가 작은 MgO 분말 입자는 표면적이 크기 때문에, 각각의 MgO 분말 입자를 모두 코팅하려면 많은 양의 금속 프리커서가 필요하다고 예상하였다. 하지만 실제로 실험한 결과, 금속 1.0 at% 이하의 소량만으로도 MgO 분말 입자에 충분한 코팅이 이루어졌으며, 직경이 20㎛ 미만인 MgO 분말 입자의 흡습성 문제를 해결하였다.

[0047] 도 1은 MgO 분말 입자의 크기와 첨가제 형태에 따른 첨가제의 분산성을 보여주는 개략도이다.

[0048] 도 1에 도시된 바와 같이, 직경이 20㎛ 이상인 큰 입자를 제조하기 위해서 MgO 원료 분말과 산화물 입자 형태의 첨가제를 혼합했을 때, 직경이 큰 MgO 입자 각각에 균일한 양의 첨가제가 골고루 분산된 것을 보여준다.

[0049] 직경이 20㎛ 미만인 작은 입자를 제조하기 위해서 MgO 원료 분말과 산화물 입자 형태의 첨가제를 혼합했을 때, 일부 MgO 입자에만 첨가제가 혼합된 것을 보여준다.

[0050] 반면, MgO 원료 분말과 금속 프리커서 형태의 첨가제를 혼합했을 때, 첨가제가 모든 MgO 분말 입자에 골고루 분산된 것을 보여준다.

[0051] 따라서, 직경이 작은 MgO 입자를 제조할 경우, 금속 프리커서 형태의 첨가제를 사용해야 모든 MgO 분말 입자 표면에 균일한 코팅막을 형성할 수 있다.

[0052]

[0053] 본 발명은 직경이 20㎛ 미만인 MgO 소재를 제조하기 위해 MgO 원료 분말에 금속 프리커서(precursor)를 첨가하여 건조하고 열처리함으로써, 직경이 작은 각각의 MgO 분말 입자를 균일하게 코팅할 수 있으며, 흡습성 문제가 개선되고 저온에서 소결 특성이 우수한 MgO 소재 및 그 제조 방법에 관한 것이다.

[0054]

[0055] MgO 소재의 제조 방법은 MgO 원료 분말에 유기 용매를 사용한 실시예와 $Mg(OH)_2$ 원료 분말에 증류수를 사용한 실시예를 포함할 수 있다.

[0056] MgO 원료 분말을 이용한 MgO 소재의 제조 방법은 MgO 원료 분말에 금속 프리커서와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계, 상기 혼합물을 건조시키는 단계 및 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함할 수 있다. 또한 첨가제인 금속 프리커서의 분산성을 높이기 위해 혼합물을 형성하는 단계에서 분산제를 사용할 수 있다.

[0057] $Mg(OH)_2$ 원료 분말을 이용한 MgO 소재의 제조 방법은 $Mg(OH)_2$ 원료 분말에 금속 프리커서와 증류수를 첨가하여

혼합물을 형성하는 단계, 상기 혼합물을 건조시키는 단계 및 상기 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

[0058]

[0059] MgO 소재의 제조 방법에서 출발 원료로서 MgO 원료 분말 대신 $Mg(OH)_2$ 원료 분말을 사용하는 경우, 유기용매 대신 증류수를 첨가하는 것이 바람직하다.

[0060] 이외에 제조 조건은 MgO 원료 분말을 사용한 MgO 소재의 제조 방법과 동일한 조건으로 수행될 수 있다.

[0061]

[0062] 하기 MgO 소재의 제조 방법은 MgO 원료 분말에 유기 용매를 사용한 실시예로 설명하기로 한다.

[0063] MgO 원료 분말에 금속 프리커서와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계에서, 금속 프리커서를 유기 용매에 용해시켜 마련된 용액과 MgO 원료 분말을 혼합하여 혼합물을 형성할 수 있다. 또한 첨가제인 금속 프리커서의 분산성을 높이기 위해 분산제를 사용할 수 있다.

[0064] 출발 물질인 비정형 MgO 원료 분말은 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가질 수 있고, 바람직하게는 0.1㎛ 이상 내지 20㎛ 미만, 0.1㎛ 이상 내지 18㎛ 이하, 0.1㎛ 이상 내지 16㎛ 이하, 0.1㎛ 이상 내지 14㎛ 이하, 보다 바람직하게는 0.1㎛ 이상 내지 10㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가질 수 있다.

[0065] 평균 직경(D50)은 직경 분포의 50% 기준에서의 직경으로 정의할 수 있다.

[0066] 평균 직경(D50)은 입도 분석 장비(LASER PARTICLE SIZE ANALYZER , LS13 320, BECKMAN COULTER, INC.)를 이용하여 측정할 수 있다.

[0067] 본 발명에 사용된 금속 프리커서는 반응에서 특정 물질이 되기 전 단계의 물질을 가리키며, 금속과 함께 C, H, N, O, Cl, S 중 1종 이상의 원소로 구성되는 물질을 포함할 수 있다. 바람직하게 금속 프리커서는 Ti, Nb, Zr, Ga, Mn, B, Fe, Sn, Mn, Si, V, Ta, Sb, Y, Eu, Er 및 Al 중 1종 이상의 금속에 C, H, N, O, Cl, S 중 1종 이상의 원소가 결합된 화합물을 포함할 수 있다.

[0068] 금속 프리커서는 금속과 산소(O)만 결합되어 있는 금속 산화물 분말이 아니라, 공기 또는 산소 분위기에서 물질에 따라서 열처리 온도 차이는 있지만 200℃ 이상의 온도로 열처리하면 금속 산화물이 되는 물질이다.

[0069] 따라서 본 발명에서의 금속 프리커서는 MgO 소재를 제조하기 위한 열처리 조건인 1000 ~ 1700℃에서 금속 산화물이 되는 특징이 있다.

[0070] 금속 프리커서는 상온에서 액상 형태뿐만 아니라, 고체 입자 형태 또는 점도를 갖는 반고체(겔 gel) 형태일 수 있다. 즉, 금속 프리커서는 상기 금속에 C, H, N, O, Cl, S 중 1종 이상의 원소가 결합된 화합물이면서, 상온에서 액상 형태, 고상 형태 또는 겔 형태일 수 있다.

[0071] 이러한 금속 프리커서는 형태와 무관하게 200℃ 이상의 열처리에 의해 금속을 제외한 나머지 원소들이 제거되며, 금속이 산화되면서 나노 크기의 입자로 형성될 수 있다. 형성된 나노 크기의 입자, 즉 금속 산화물 입자가 MgO 원료 분말과 만나 Mg와 금속이 결합된 산화물이 형성될 수 있으며, 금속 프리커서는 1000℃ 이상의 온도에서 액상이 될 수 있다.

[0072] 이러한 금속 프리커서는 열처리에 의해 Mg-금속-O 구조를 갖는 액상 상태에서 MgO 분말 입자의 표면을 덮게 된다. 형성된 수분 방어층에는 금속 산화물 형태도 포함될 수 있으나, 대부분 Mg, 금속, O이 연결(결합)되는 형태로 존재하기 때문에 금속 산화물 형태로 존재하지 않는 경우가 많다.

[0073] 예를 들어, 금속 프리커서는 $TiOSO_4$, $TiNO_4C_9H_{19}$, $Ti[OCH(CH_3)_2]_4$, $C_4H_4NNbO_9 \cdot xH_2O$, $Zr(NO_3)_4$, $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ 등을 포함할 수 있다.

[0074]

[0075] 유기 용매는 2-프로판올, 무수 알코올, 에탄올, 메탄올 등을 포함할 수 있으며, 물이 거의 포함되지 않은 용매를 포함할 수 있다.

[0076]

[0077] 본 발명에서는 금속 프리커서를 첨가제로 사용함으로써, 혼합 단계에서 첨가제의 분산성을 향상시킬 수 있다.

이에 따라 직경이 20㎛ 미만인 MgO 소재를 제조할 때에도 MgO 분말 입자에 충분한 수분 방어층(코팅막)을 형성하기에 유리한 이점을 얻을 수 있다. 결국, 직경이 작은 MgO 분말 입자는 표면에 형성된 수분 방어층에 의해 수분 반응이 억제되어 내흡습성이 우수한 효과를 나타낼 수 있다.

[0078]

[0079] 금속 프리커서의 첨가량 관련하여, MgO 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 첨가할 수 있다.

[0080] 바람직하게는 상기 금속 0.15 ~ 1.0 at%, 0.20 ~ 1.0 at%, 보다 바람직하게는 상기 금속 0.25 ~ 1.0 at%를 첨가할 수 있다. 예를 들어, 금속 Ti 0.5at%에 해당하는 양의 금속 프리커서 $TiNO_4C_9H_{19}$을 첨가할 수 있다.

[0081] 상기 “at%”는 원자 백분율의 약어로서, MgO의 Mg 원소 수와 금속 프리커서 내의 금속 원자 수의 백분율을 의미한다.

[0082] 금속 프리커서의 첨가량이 0.1 at% 이하인 경우 MgO 분말 입자의 표면에 수분 방어층을 형성하는 것이 불충분하여 수분 반응에 대한 저항성이 떨어질 수 있다. 반대로 금속 프리커서 첨가량이 1.0 at%을 초과하는 경우 이차상(불순물)의 형성으로 인해 열전도도가 저하될 수 있다.

[0083]

[0084] 혼합물을 형성하는 단계에서 볼밀, 호모게나이저 등의 다양한 혼합 장비를 통해 혼합 및 분쇄하여 혼합물을 형성할 수 있다.

[0085] 볼밀 등의 혼합 및 분쇄 공정을 수행할 경우, 혼합 및 분쇄는 30분 ~ 72시간 동안 수행될 수 있고, 바람직하게는 1 ~ 50시간 동안 수행될 수 있다.

[0086] 혼합 및 분쇄 시간이 30분 미만일 경우, MgO와 금속 프리커서의 혼합 및 분쇄가 제대로 이루어지지 않을 수 있다. 반대로, 혼합 및 분쇄 시간이 72시간을 초과할 경우 분쇄 시간이 너무 길어지면서 공정이 비효율적일 수 있다.

[0087] 호모게나이저 등의 혼합 공정을 수행할 경우, 혼합은 1분 ~ 24시간 동안 수행될 수 있고, 바람직하게는 10분 ~ 10시간 동안 수행될 수 있다.

[0088] 혼합 시간이 1분 미만일 경우, MgO 원료 분말과 금속 프리커서의 혼합이 제대로 이루어지지 않을 수 있다. 반대로, 혼합 시간이 24시간을 초과할 경우 혼합 시간이 너무 길어지면서 공정이 비효율적일 수 있다.

[0089]

[0090] 혼합물을 건조시키는 단계에서, 유기 용매를 제거하기 위해 80 ± 5℃에서 건조가 수행될 수 있다.

[0091]

[0092] 건조된 혼합물을 열처리하여 MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층을 형성하는 단계에서, 전기로, 고온 열처리 장비 등을 이용하여 건조된 혼합물을 1000 ~ 1700℃에서 열처리할 수 있다.

[0093] 열처리 온도는 1000 ~ 1700℃에서 수행될 수 있고, 바람직하게는 1100 ~ 1500℃에서 수행될 수 있다. 열처리 온도가 1000 ~ 1700℃를 만족함으로써, MgO 분말 입자 표면에 Mg과 금속이 결합된 산화물을 포함하는 액상을 코팅하여 표면 보호층, 수분 방어층을 형성할 수 있다. 만일 열처리 온도가 1000℃ 미만일 경우 수분 방어층을 충분히 형성하기 어려울 수 있다. 반대로 열처리 온도가 1700℃ 보다 높을 경우 공정 비용이 높아져서 제조 비용 측면에서 바람직하지 않다.

[0094] 이때 직경이 작은 MgO 분말 입자를 제조하기 위해, 직경 20㎛ 미만의 MgO 분말 입자끼리의 연결을 최소화해야 하므로 열처리 시간을 짧게 유지하는 것이 바람직하다. 예를 들어 열처리 시간은 1초 ~ 4시간 동안 수행될 수 있고, 바람직하게는 1초 ~ 2시간 동안 수행될 수 있다.

[0095]

[0096] 열처리 중 금속 프리커서에 포함된 C, H, N, O, Cl, S 중 1종의 원소, 2종 이상으로 형성된 화합물이 연소되면서 MgO 분말 입자 표면에는 금속과 Mg로 형성된 산화물 형태로 남아 있게 된다. 첨가한 금속 프리커서의 금속이 산화되면서 MgO 원료 분말과 만나 액상을 형성하게 되고, 형성된 액상은 MgO 분말 입자 표면을 덮어 수분 방어

층을 형성하게 된다.

[0097] 또한 열처리 중 첨가제인 금속 프리커서의 금속이 산화되어 형성되는 금속 산화물 일부가 액상과 함께 MgO 분말 입자 표면으로 이동하여 분말 표면에 모이게 된다. 그 결과 MgO 분말 입자 표면에 금속과 Mg가 결합된 액상의 산화물로부터 형성된 수분 방어층을 형성할 수 있다. 결국, MgO 분말 입자 내부와 조성이 다른 수분 방어층을 MgO 분말 입자 표면에 형성할 수 있다. MgO 분말 입자 표면에 수분 방어층이 형성됨으로써, MgO 분말 입자의 낮은 내흡습성을 개선할 수 있고, MgO 분말 입자 표면에 $Mg(OH)_2$ 가 형성되는 것을 억제하여 우수한 열전도성을 나타낼 수 있다.

[0098] 또한 열처리 후, MgO 소재에서 수분 방어층의 치밀도는 MgO 분말 입자 내부의 치밀도와 다를 수 있다. 구체적으로, 열처리 후, MgO 소재에서 수분 방어층의 치밀도는 MgO 분말 입자 내부의 치밀도보다 높을 수 있다.

[0099] 또한 열처리 후, MgO 소재에서 수분 방어층은 MgO 분말 입자 내부와 다른 상이 형성될 수 있다. 소결된 MgO 분말 입자의 표면보다 MgO 분말 입자 내부에 MgO 함량이 더 많고, 이는 소결된 MgO 분말 입자의 표면에 Mg-금속-O가 결합된 구조의 수분 방어층이 형성되는 것을 의미한다.

[0100] 그리고, 수분 방어층 내부의 금속 원소 함량이 MgO 분말 입자 내부의 금속 원소 함량보다 더 높았다.

[0101] 이는 MgO 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 1.0 at.% 이하로 소량 첨가되었으며, 수분 방어층 내부의 금속 농도는 MgO 소재 전체의 금속 평균 농도보다 높고, 그로 인해 MgO 분말 입자 내부의 금속 함량보다 수분 방어층 내부의 금속 함량이 더 높음을 보여준다. 그 차이는, 수분 방어층 내부의 금속 함량이 MgO 분말 입자 내부의 금속 함량보다 적어도 2배 이상, 바람직하게는 3배 이상, 보다 바람직하게는 10배 이상 높은 농도로 측정될 수 있다.

[0102]

[0103] 다른 실시예에 있어서, $Mg(OH)_2$ 원료 분말을 사용하는 경우, 증류수를 사용할 수 있다. 또한 첨가제인 금속 프리커서의 분산성을 높이기 위해 분산제를 사용할 수 있다. 소결 중에 $Mg(OH)_2$에서 H_2O가 제거됨에 따라 소결 전 $Mg(OH)_2$ 성형체 대비, MgO 소결체의 수축률이 20 ~ 40%를 나타낼 수 있다.

[0104] MgO 분말을 사용하면 소결 전 MgO 성형체 대비, MgO 소결체의 수축률이 10 ~ 30%인 것에 비해, 높은 수축률을 보인다.

[0105] $Mg(OH)_2$ 원료 분말은 20㎛ 미만의 직경을 가질 수 있다.

[0106] 그리고 금속 프리커서는 증류수에 대한 용해성이 우수한 화합물을 포함할 수 있다. $Mg(OH)_2$ 원료 분말의 Mg과 금속 프리커서의 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 첨가할 수 있다.

[0107] 이외의 제조 조건은 상기 MgO 원료 분말을 사용하는 제조 방법과 동일하므로 생략하기로 한다.

[0108]

[0109] 본 발명의 제조 방법에 따라 제조된 MgO 소재는 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 나타낼 수 있으며, 열계면 소재를 구성하는 열전도성 입자 중 직경이 작은 입자에 적용될 수 있다.

[0110] 본 발명의 MgO 소재는 MgO 분말 입자 및 상기 MgO 분말 입자 표면에 배치된 수분 방어층을 포함할 수 있다.

[0111] MgO 소재를 구성하는 비정형 MgO 분말 입자는 0.1㎛ 이상 내지 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가질 수 있다.

[0112] 그리고 제조된 MgO 소재는 0.1㎛ 이상 내지 20㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가질 수 있고, 바람직하게는 1㎛ 이상 내지 18㎛ 이하, 1㎛ 이상 내지 16㎛ 이하, 1㎛ 이상 내지 14㎛ 이하, 보다 바람직하게는 1㎛ 이상 내지 10㎛ 미만의 평균 직경(D50)을 가질 수 있다.

[0113] 수분 방어층은 MgO와 금속 프리커서로부터 형성되며, Ti, Nb, Zr, Ga, Mn, B, Fe, Sn, Mn, Si, V, Ta, Sb, Y, Eu, Er 및 Al 중 1종 이상의 금속 원소를 포함할 수 있다. 그리고 수분 방어층은 Mg에 비해 원자가가 높아 도너(donor)에 해당하는 금속 산화물로, TiO_2, Nb_2O_5, ZrO_2, Ga_2O_3, Mn_2O_3, B_2O_3, Fe_2O_3, SnO_2, MnO_2, SiO_2, V_2O_5, Ta_2O_5, Sb_2O_5, Y_2O_3, Eu_2O_3, Er_2O_3 및 Al_2O_3 중 1종 이상을 포함할 수도 있다.

[0114] 수분 방어층에는 Mg-금속-O 구조의 화합물 또는/및 상기 1종 이상의 금속 산화물이 존재할 수 있으며, 바람직하

게는 대부분 Mg, 금속, O가 결합된 화합물로 존재하게 된다.

[0115]

[0116] MgO 소재에서, Mg과 금속 전체 100at%에 대하여, 금속 0.1 at% 초과 내지 1.0 at% 이하를 포함할 수 있다. 바람직하게는 금속 0.15 ~ 1.0 at%, 0.20 ~ 1.0 at%, 보다 바람직하게는 금속 0.25 ~ 1.0 at%를 포함할 수 있다.

[0117] 또한 열처리 중 금속과 Mg가 결합된 액상의 산화물로부터 형성되는 수분 방어층을 포함하는 MgO 소재에서, MgO 분말 입자 내부의 조성과 수분 방어층의 조성이 서로 다를 수 있다.

[0118]

[0119] 본 발명의 MgO 소재는 85℃ 및 85% RH 조건에서 72시간 동안 방치한 후, 측정된 무게 증가율이 5% 이하일 수 있다.

[0120] 바람직하게는 무게 증가율이 0% 초과 내지 5% 이하일 수 있고, 보다 바람직하게는 0% 초과 내지 4% 이하, 보다 더 바람직하게는 0% 초과 내지 3% 이하일 수 있다.

[0121] MgO 소재는 MgO 분말 입자 표면에 형성된 수분 방어층에 의해 물과 반응이 억제되기 때문에 MgO 소재의 무게 증가율이 5% 이하를 나타낼 수 있으며, 물 반응에 대한 저항성이 우수한 효과를 나타낼 수 있다.

[0122]

[0123] 또한 전술한 바와 같이, 본 발명의 MgO 소재는 1700℃ 이하에서 저온 소결되어 치밀한 미세구조를 나타낼 수 있고, MgO 분말 입자 내부와 조성이 다른 수분 방어층을 MgO 분말 입자 표면에 형성할 수 있다.

[0124] 또한 본 발명의 MgO 소재는 3.0g/cm^3 내지 3.7g/cm^3의 우수한 소결 밀도 값과 10.0mm^2/s 내지 23.0mm^2/s의 우수한 열확산도 값을 나타낼 수 있으며, 열전도성이 우수한 효과가 있다.

[0125]

[0126] 이와 같이 MgO 소재 및 그 제조 방법에 대하여 그 구체적인 실시예를 살펴보면 다음과 같다.

[0127]

[0128] 도 2는 본 발명의 제조 방법에 따라 제조된 MgO 소재의 SEM 이미지이다.

[0129] JSM-5800; JEOL CO., Tokyo, Japan 장비를 이용하여 SEM을 측정하였다.

[0130] 직경이 1 ~ 15㎛, 1 ~ 5㎛인 MgO 분말 각각에 0.5 at.% Ti에 해당하는 양의 $C_9H_{19}NO_4Ti$를 첨가하여 2 프로판올을 용매로 볼밀 공정을 통해 혼합하고, 이후 이들을 건조시켰다.

[0131] 건조된 혼합분말을 구형화 공정 없이 전기로를 이용하여 1400℃의 온도에서 1초 동안 열처리하였다.

[0132] 도 2를 참조하면, 직경이 1 ~ 15㎛인 MgO 소재와 직경이 1 ~ 5㎛인 MgO 소재는 금속 프리커서와 혼합되어 열처리 후, 비정형 형상을 보여준다.

[0133]

[0134] 도 3은 본 발명의 MgO 원료 분말에 프리커서 형태의 첨가제와 산화물 입자 형태의 첨가제를 첨가했을 때, 첨가제 함량(at%)에 따른 MgO 소재의 무게 증가율을 나타낸 그래프이다.

[0135] 85℃ 및 85% RH 조건에서 72시간 동안 MgO 소재를 방치한 후, 측정된 무게 증가율을 나타내었다. 무게 증가율(%)은 {(방치 후 MgO 소재의 무게 - 방치 전 MgO 소재의 무게) / 방치 전 MgO 소재의 무게} X100% 로 계산하였다.

[0136] 도 3을 참조하면, 직경이 작은 원료 분말에 금속 프리커서인 $C_9H_{19}NO_4Ti$를 첨가했을 때, Ti 첨가량이 0 at% 초과 ~ 0.1 at% 구간에서는 MgO 소재의 무게 증가율이 급격히 감소하였고, 0.1 at% 이후 ~ 1.0 at% 구간에서는 MgO 소재의 무게 증가율의 기울기가 0.1 at% 이전의 기울기 대비, 급격히 감소하는 현상이 관찰되었다.

[0137] 특히 Ti 첨가량이 0.1 at% 초과 ~ 1.0 at% 이하일 때 무게 증가율이 5% 이하를 나타냈고, 0.20 ~ 1.0 at%, 0.25 ~ 1.0 at%일 때 무게 증가율이 3% 이하를 나타냈다.

[0138] 반면, 직경이 작은 원료 분말에 첨가제인 TiO_2 입자를 첨가했을 때, MgO 소재의 무게 증가율이 소폭 감소하는 현상이 관찰되었고, 무게 증가율이 5% 초과 ~ 25% 이하를 나타냈다.

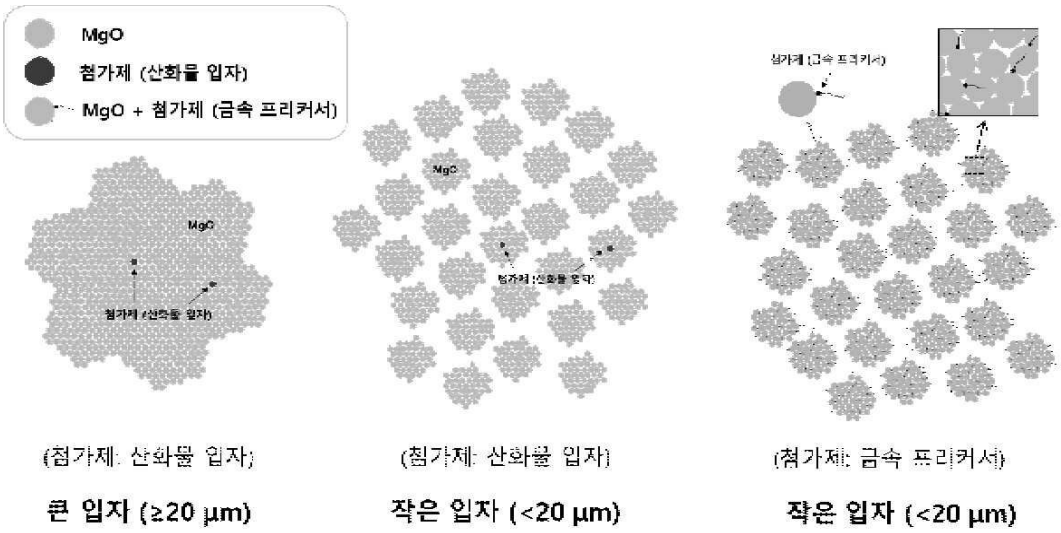
[0139] 이처럼 직경이 작은 원료 분말에 금속 프리커서를 0.2 at% ~ 1.0 at% 로 첨가했을 때, 무게 증가율이 0% 초과 내지 3% 이하로 매우 낮게 유지된 것을 확인할 수 있다.

[0140]

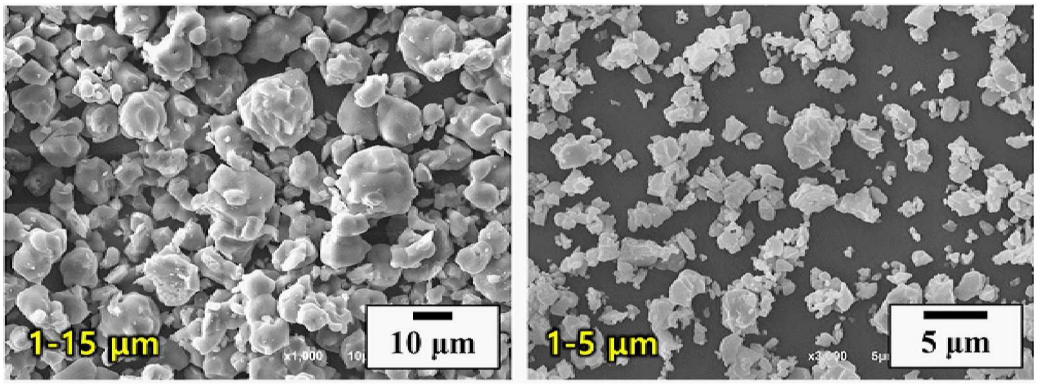
[0141] 이상과 같이 본 발명에 대해서 예시한 도면을 참조로 하여 설명하였으나, 본 명세서에 개시된 실시예와 도면에 의해 본 발명이 한정되는 것은 아니며, 본 발명의 기술사상의 범위 내에서 통상의 기술자에 의해 다양한 변형이 이루어질 수 있음은 자명하다. 아울러 앞서 본 발명의 실시 예를 설명하면서 본 발명의 구성에 따른 작용 효과를 명시적으로 기재하여 설명하지 않았을 지라도, 해당 구성에 의해 예측 가능한 효과 또한 인정되어야 함은 당연하다.

도면

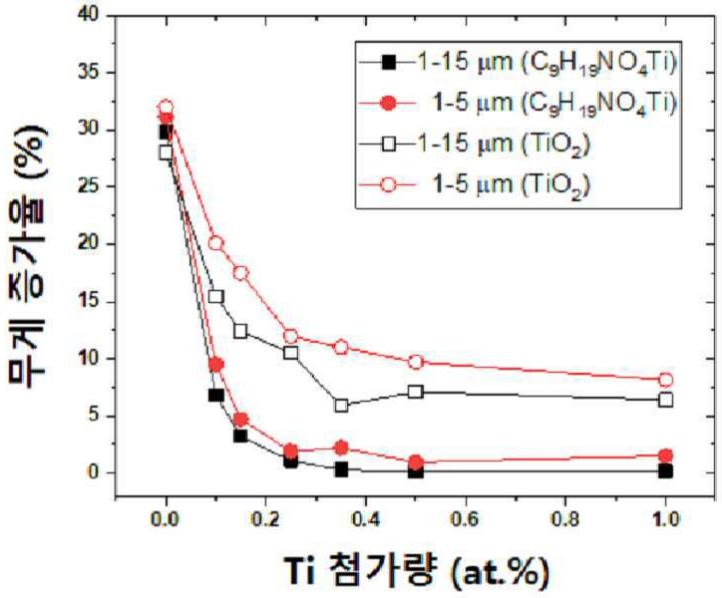
도면1



도면2



도면3


무게 증가율 (%)
Ti 첨가량 (at.%)
1-15 μm ($C_9H_{19}NO_4Ti$)
1-5 μm ($C_9H_{19}NO_4Ti$)
1-15 μm (TiO_2)
1-5 μm (TiO_2)
0
5
10
15
20
25
30
35
40
0.0
0.2
0.4
0.6
0.8
1.0