



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0081969
(43) 공개일자 2020년07월08일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C04B 35/581 (2006.01) C04B 35/63 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C04B 35/581 (2013.01)
C04B 35/6303 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2018-0172038
(22) 출원일자 2018년12월28일
심사청구일자 2018년12월28일

(71) 출원인
한국세라믹기술원
경상남도 진주시 소호로 101 (충무공동, 부속건물 세라믹소재종합지원센터)
(72) 발명자
류성수
경기도 용인시 기흥구 용구대로2518번길 15 신촌마을포스홈타운1단지아파트 209동 1303
백수현
경기도 평택시 중앙로 176 102동 1403호
김경민
경기도 광명시 오리로994번길 20 LG베스트빌 202호
(74) 대리인
윤상훈

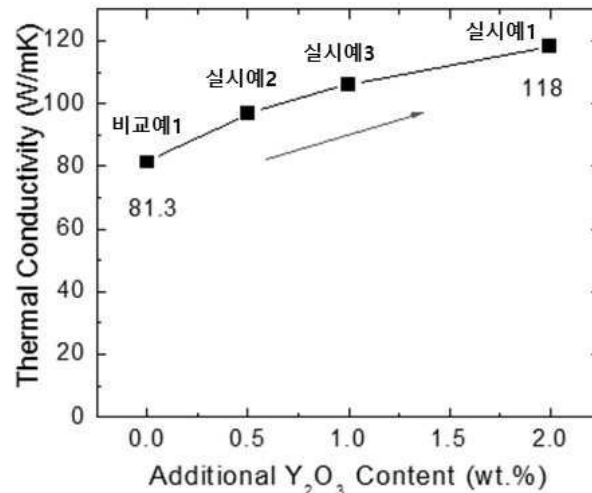
전체 청구항 수 : 총 11 항

(54) 발명의 명칭 질화알루미늄 소결용 조성물 및 질화알루미늄 소결체

(57) 요약

본 발명이 해결하고자 하는 과제는 낮은 온도에서도 소결이 가능하고 열전도도가 높으면서 동시에 강도가 우수한 질화알루미늄 소결체를 만들기 위한 질화알루미늄 소결용 조성물 및 이를 소성하여 만들어지는 질화알루미늄 소결체를 제공함에 있다. 상기 과제를 해결하기 위한 본 발명의 일 측면은, 비정질 세라믹 첨가제, 결정질 세라믹 첨가제 및 질화알루미늄 분말을 포함하는 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공하는 것이다. 상기 과제를 해결하기 위한 본 발명의 또 다른 측면은, 상기 질화알루미늄 소결용 조성물을 소성하여 만들어지는 질화알루미늄 소결체를 제공하는 것이다.

대표도 - 도3



(52) CPC특허분류

C04B 2235/3206 (2013.01)
 C04B 2235/3217 (2013.01)
 C04B 2235/3225 (2013.01)
 C04B 2235/36 (2013.01)
 C04B 2235/365 (2013.01)
 C04B 2235/442 (2013.01)
 C04B 2235/5445 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	17-CM-MA-18
부처명	국방부
연구관리전문기관	국방과학연구소 민군협력진흥원
연구사업명	민군겸용기술개발사업
연구과제명	전력모듈 디바이스용 고강도 질화알루미늄 방열세라믹 소재 개발
기 여 율	1/1
주관기관	한국세라믹기술원
연구기간	2017.06.23 ~ 2019.06.23

명세서

청구범위

청구항 1

비정질 세라믹 첨가제, 결정질 세라믹 첨가제 및 질화알루미늄 분말을 포함하는 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 비정질 세라믹 첨가제는 비정질 코디어라이트(cordierite) 글래스, 비정질 붕규산 유리, 비정질 $\text{MgO-CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 글래스 및 비정질 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 글래스로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상을 포함하는, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 비정질 세라믹 첨가제는 착체 중합법으로 만들어지는, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 결정질 세라믹 첨가제는 Y_2O_3 , CaCO_3 , MgO 및 Al_2O_3 로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상을 포함하는, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 비정질 세라믹 첨가제는 상기 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 0.5~5%인, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 6

제 1 항에 있어서,

상기 비정질 세라믹 첨가제는 평균 입자 크기가 $1.0\mu\text{m}$ 이하인, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 7

제 1 항에 있어서,

상기 결정질 세라믹 첨가제는 상기 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 0.5~5%인, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 8

제 1 항에 있어서,

상기 비정질 세라믹 첨가제의 중량과 상기 결정질의 세라믹 첨가제의 중량의 합은 상기 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 1~6%인, 질화알루미늄 소결용 조성물.

청구항 9

제 2 항에 있어서,

상기 비정질 $\text{MgO-CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 계 글래스는 $\text{MgO:CaO:Al}_2\text{O}_3\text{:SiO}_2$ 의 몰비가 1:1~5:1~3:5~11인, 질화알루미늄 소결

용 조성물.

청구항 10

제 1 항 내지 제 9 항 중 어느 한 항에 기재된 질화알루미늄 소결용 조성물을 소성하여 만들어지는, 질화알루미늄 소결체.

청구항 11

제 10 항에 있어서, 상기 소성은 1400~1700℃에서 이루어지는, 질화알루미늄 소결체.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 질화알루미늄 소결용 조성물 및 그로부터 만들어지는 질화알루미늄 소결체에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 1700℃ 이하의 온도에서도 소결이 가능하고 높은 밀도와 열전도도를 얻을 수 있으며 동시에 강도가 우수한 질화알루미늄 소결체를 제조할 수 있는 소결용 조성물 및 그로부터 만들어지는 소결체에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 질화알루미늄(AlN)의 결정구조는 Al 또는 N을 중심으로 한 사면체가 기본구조가 된다. 이러한 사면체가 상호 교차하여 육사고날 우르자이트(hexagonal wurtzite) 구조를 가지고 있으며, 원자간 결합은 공유결합으로 이루어져 있다. 이상적인 우르자이트(wurtzite) 구조에서는 c축과 a축의 비가 1.633인데 반해, AlN은 격자상수가 $a = 0.31127\text{nm}$, $c = 0.49816\text{nm}$ 로서 c/a 비가 약간 변이된 우르자이트(wurtzite) 구조를 갖는다.

[0003] 이러한 질화알루미늄은 알루미늄(Al_2O_3)보다 10배 이상 높은 열전도도($319\text{W/m}\cdot\text{K}$)와 우수한 전기절연특성($9 \times 10^{13} \Omega \cdot \text{cm}$), 그리고 실리콘(Si)과 비슷한 열팽창계수(4×10^{-6}), 우수한 기계적강도로 인해 고열전도 세라믹스의 반도체 기판이나 부품에 응용되고 있다. 이러한 특성으로 질화알루미늄은 반도체 장비용 부품으로 많이 이용되고 있으며, 구체적으로 금속박막접착 질화알루미늄기판, LED(Light Emitting Diode)용 방열판, 고출력 Si장치용 방열판, 화합물반도체용 레이저소자용 기판, 하이브리드자동차 전원제어용 기판 등에 이용되고 있다. 이중 반도체 제조장비용 부품에 사용되는 질화알루미늄의 경우 열전도성, 열팽창 그리고 플라즈마에 대한 내성이 우수하여 발열체(Heater), 정전척(Electrostatic Chuck), 세라믹 챔버 부품 등에 사용되고 있으며, 열전도도가 뛰어난 질화알루미늄의 경우 레이저 다이오드나 LED용 방열판에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다.

[0004] 그러나, 질화알루미늄(AlN)은 강한 공유결합의 특성으로 소결이 어렵고 치밀한 소결체를 얻기 위해서는 2,000℃ 이상 고온의 가압소결이 요구되고, 분위기 제어 없이 소결하게 되면 1,000℃ 이상의 고온에서는 산화되는 성질을 지니고 있다. 이러한 문제점을 보완하기 위하여 출발원료인 질화알루미늄의 미립화와 알칼리토류 금속 산화물이나 희토류 금속 산화물 등의 소결조제 첨가를 통하여 상대적으로 저온에서 치밀한 소결체를 얻으려는 연구가 많이 이루어지고 있다. 또한, 질화알루미늄 소결체는 뛰어난 열전도도를 가지지만 강도면에서는 상대적으로 다른 재료의 소결체보다 낮은 특성을 나타내고 있어 이를 개선하려는 시도 또한 많이 이루어지고 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0006] (특허문헌 0001) 대한민국 특허등록공보 제10-1147029호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 낮은 온도에서도 소결이 가능하고 열전도도가 높으면서 동시에 강도가 우수

한 질화알루미늄 소결체를 만들기 위한 질화알루미늄 소결용 조성물 및 이를 소성하여 만들어지는 질화알루미늄 소결체를 제공함에 있다.

과제의 해결 수단

- [0009] 상기 과제를 해결하기 위한 본 발명의 일 측면은, 비정질 세라믹 첨가제, 결정질 세라믹 첨가제 및 질화알루미늄 분말을 포함하는 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공하는 것이다.
- [0010] 상기 과제를 해결하기 위한 본 발명의 또 다른 측면은, 상기 질화알루미늄 소결용 조성물을 소성하여 만들어지는 질화알루미늄 소결체를 제공하는 것이다.

발명의 효과

- [0012] 본 발명에 따르는 질화알루미늄 소결용 조성물을 이용하여 열전도도가 높으면서 동시에 강도가 우수한 질화알루미늄 소결체를 낮은 온도에서의 소성을 통해 얻을 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0014] 도 1 은 본 발명에 따른 질화알루미늄 소결용 조성물에 의해 성형된 기관의 소결 전과 후를 나타내는 이미지이다.
- 도 2a 내지 2d는 첨가제 조건에 따른 소결체의 단면에 대한 주사전자현미경(SEM) 이미지이다.
- 도 3은 소결체에서 Y_2O_3 첨가량에 따른 열전도도의 변화를 나타내는 그래프이다.
- 도 4 은 소결된 질화알루미늄 기관에 대한 X선 회절분석 결과를 보여주는 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0015] 이하 본 발명의 실시예에 대하여 첨부된 도면을 참고로 그 구성 및 작용을 설명하기로 한다. 하기에 본 발명을 설명함에 있어, 관련된 공지 기능 또는 구성에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명을 생략할 것이다. 또한, 어떤 부분이 어떤 구성요소를 '포함'한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성요소를 더 포함할 수 있는 것을 의미한다.
- [0016] 본 발명에 따라, 비정질 세라믹 첨가제, 결정질 세라믹 첨가제 및 질화알루미늄 분말을 포함하는 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 비정질 세라믹 첨가제를 통해 높은 밀도의 소결체를 낮은 온도에서 소결하여 얻을 수 있고, 동시에 결정질 세라믹 첨가제를 통해 질화알루미늄 소결체의 강도를 높이고 질화알루미늄의 순도를 높여 열전도도를 높일 수 있다.
- [0017] 또한 본 발명에 따라, 상기 비정질 세라믹 첨가제는 비정질 코디어라이트(cordierite) 글래스, 비정질 붕규산 유리, 비정질 $MgO-CaO-Al_2O_3-SiO_2$ 계 글래스 및 비정질 $CaO-Al_2O_3-SiO_2$ 계 글래스로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상을 포함하는, 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 비정질 세라믹 첨가제는 질화알루미늄이 낮은 온도에서도 소결이 될 수 있도록 도와 주는 첨가제로서, 상술한 비정질 세라믹 첨가제들은 모두 열팽창계수가 작아 열충격에 강한 특성을 가지고 있어 질화알루미늄 소결에 적합하다.
- [0018] 또한, 본 발명에 따라, 상기 비정질 세라믹 첨가제는 착체 중합법으로 만들어지는 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 일반적인 고상 반응법에서는 기계적 분쇄와 혼합에 의존하기 때문에 합성된 분말의 균일 및 균질성이 떨어지고 1 마이크로 이하의 입자를 만들기 어렵다. 이러한 고상 반응법의 문제점을 개선하기 위해 습식화합법이 많이 이용되고 있으며, 이중에서 졸겔법이나 공침법 등이 주로 사용되고 있다. 이러한 습식 화합법은 분말을 미립자화함에 있어 장점이 있지만 여러 성분이 혼합된 분말에서 화학양론적 조성을 유지하기 어려운 단점이 있다. 이에 비해 착체 중합법은 복합 산화물 분말을 제조하는 경우 양이온들의 화학 양론적 조성이 유지되고 또한 양이온의 낮은 이동도에 기인한 응집 방지 효과 등으로 균질하고 미세한 입자들로 구성된 다성분계 복합 산

화물 분말을 쉽게 얻을 수 있다. 또한, 높은 순도와 균일성을 보이고 합성한 분말의 화학적 물리적 특성 제어가 용이하며 공정상으로도 비교적 낮은 온도에서 제조되고 고상 반응법에서 필요한 분쇄, 재소결 단계가 없는 장점이 있다.

- [0019] 본 발명에서, 착체중합법은 에틸렌 글리콜(Ethylene glycol)과 같은 글리콜(glycol)계 용매와 시트르산(citric acid)과 같은 α -하이드록시 카르복실산(α -hydroxy carboxylic acid)을 사용하여 각 금속 이온들을 수지상 안에 균일하게 분포시킨 금속-킬레이트 복합체(metal-chelate complex)를 형성시킨 후, 적정온도(100℃ 이하)에서 폴리에스테르(polyester)화 반응을 유도하여 폴리머 수지를 형성하고 이를 300℃ 이상의 온도에서 가열함으로써 폴리머(polymer)의 분해를 일으켜 유기물을 제거하고 비정질 글래스를 제조하는 방법을 의미한다. 이러한, 착체중합법은 출발 용액 상태의 양이온들이 화학양론적 조성비를 최종 생성물인 산화물 상태에서도 유지할 수 있게 되는 장점이 있고, 양이온의 이동도가 낮아 분말이 형성되면서 응집되는 것을 방지할 수 있다.
- [0020] 본 발명에 따라, 상기 결정질 세라믹 첨가제는 Y_2O_3 , $CaCO_3$, MgO 및 Al_2O_3 로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상을 포함하는 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 결정질 세라믹 첨가제는 질화알루미늄 표면에서 공정(eutectic) 반응을 통해 소결온도를 낮춰주는 역할을 하고, 질화알루미늄 표면에 존재하는 산소와 반응하여 이차상을 형성함으로써 질화알루미늄 자체의 순도를 높여 최종 소결체의 열전도도를 높여주는 역할을 하게된다.
- [0021] 또한, 본 발명에 따라 비정질 세라믹 첨가제는 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 0.5~5%인 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 비정질 세라믹 첨가제의 양이 너무 적으면 소결온도를 낮게 가져가기 어렵고, 소결체의 밀도가 낮게되는 문제가 있다. 반대로 양이 너무 많으면 열전도도가 낮아지는 문제가 있다. 따라서 비정질 세라믹 첨가제는 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 0.5~5%가 바람직하고, 더 바람직하게는 0.5~3% 이다.
- [0022] 본 발명에 따라, 상기 비정질 세라믹 첨가제는 평균 입자 크기가 1.0 μm 이하인, 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 비정질 세라믹 첨가제의 크기가 작을수록 반응성이 커져서 낮은 온도에서도 원활한 소결이 이루어지고 이에 따라 소결체의 열전도도도 좋아지게 되기 때문이다.
- [0023] 본 발명에 따라, 결정질 세라믹 첨가제는 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 0.5~5%인 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 결정질 세라믹 첨가제의 양이 너무 적으면 최종 소결체의 열전도도가 낮게 되고, 너무 많으면 질화알루미늄 입자의 입성장이 발생하여 소결체의 강도가 떨어지는 문제가 발생한다. 따라서 결정질 세라믹 첨가제는 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 0.5~5%가 바람직하고, 더 바람직하게는 0.5~3%이다.
- [0024] 또한, 본 발명에 따라, 비정질 세라믹 첨가제의 중량과 결정질의 세라믹 첨가제의 중량의 합은 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 1~6%인 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 전체 첨가제의 양이 너무 적으면 안정적인 소결체를 형성할 수 없어 소결체의 밀도가 낮게 되고 이에 따라 열전도도와 강도가 떨어지게 된다. 반대로 너무 많아도 열전도 역할을 하는 질화알루미늄의 양이 줄어들어 열전도도가 떨어지게 되는 문제가 있다. 따라서, 첨가제의 총량은 질화알루미늄 소결용 조성물 전체 중량의 1~6%인 것이 바람직하다.
- [0025] 또한, 본 발명에서 비정질 MgO - CaO - Al_2O_3 - SiO_2 계 글래스는 $MgO:CaO:Al_2O_3:SiO_2$ 의 몰비가 1:1~5:1~3:5~11인 질화알루미늄 소결용 조성물을 제공한다. 비정질 MgO - CaO - Al_2O_3 - SiO_2 계 글래스는 상기 조성일 때 융점이 낮아져 질화알루미늄을 소결할 때 충분한 밀도를 나타낼 수 있다.
- [0026] 또한, 본 발명에서는 상술한 다양한 질화알루미늄 소결용 조성물을 소성하여 만들어지는 질화알루미늄 소결체를 제공한다. 비정질 세라믹 첨가제와 결정질 세라믹 첨가제를 동시에 포함하는 질화알루미늄 소결용 조성물을 비교적 낮은 온도에서 소결함으로써 열전도도가 높으면서 동시에 강도가 우수한 질화알루미늄 소결체를 얻을 수 있다. 소성할 때 온도는 1400~1700℃에서 이루어지는 것이 바람직하다.
- [0027] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 보다 구체적으로 설명한다. 하기 실시예는 본 발명을 예시한 것으로서 본 발명은 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0029] (실시예 1)
- [0030] 질화알루미늄 분말에 비정질의 세라믹 분말과 결정질의 세라믹 분말을 혼합하여 혼합 분말을 제작하였다. 질화알루미늄 분말(Grade H, Tokuyama, Japan)은 고순도 알루미늄을 사용하여 열탄소 환원질화법으로 제조한 분말을 사용하였고, 물성표는 아래 표 1에 나타내었다.

표 1

비표면적(Specific Surface Area) (m ² /g)		2.50~2.68
평균 입자 크기(Mean Particle Size) (μm)		1.07~1.17
불순물	O(wt%)	0.78~0.86
	C(ppm)	130~270
	Ca(ppm)	200~240
	Si(ppm)	39~48
	Fe(ppm)	10~14

[0031]

[0032]

상기 질화알루미늄 분말에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 1.0 wt%와 2.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다. 혼합은 2번 이루어졌는데, 1차 혼합은 3D 믹서를 이용하여 50rpm으로 2시간 동안 실시하였으며 사용한 지르코니아 볼은 Ø3 규격이었다. 2차 혼합은 Ø3 규격의 지르코니아 볼을 이용하여 100rpm으로 24시간 동안 볼밀링을 하였다. 이후 테이프 캐스팅을 통해 시트를 제작하였는데, 테이프 캐스팅 시의 조건은 아래 표 2에서 정리하였다.

표 2

도포조건	멤브레인	0.30 mm
	이송속도	2 m/min
	건조	70℃
적층조건	테이블, 헤드 온도	50℃
	압력	10ton, 10초
압착조건	온도	70℃
	압력	200bar, 10분 (등방가압)
절단조건	테이블, 블레이드 온도	50℃
	절단 크기	3.5cm x 3.5cm

[0033]

[0034]

만들어진 시트는 박스로에서 580℃, 4시간 동안 유지하여 디바인딩 공정을 진행한 후 텅스텐 소결로를 이용하여 5℃/min 승온속도로 1,600℃까지 승온 후 1시간 동안 유지하여 소결을 진행하였고 소결로 내는 N₂-4wt%H₂ 혼합가스를 이용하여 비산화분위기를 유지하였다. 도 1은 이렇게 만들어진 소결 전과 소결 후 완성된 질화알루미늄 기판을 보여주고 있다.

[0035]

비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말은 착체중합법으로 만들어졌는데, 용매로 하이드록시 카르복실산계 용매인 시트르산(Citric acid)(C₆H₈O₇, 99.5%, DAE JUNG), 글리콜계 용매인 에틸렌 글리콜(Ethylene glycol)(HOCH₂CH₂OH, 99.0%, DAE JUNG)을 사용하였다. 출발원료로는 마그네슘(Mg) 전구체로 마그네슘 질산염인 마그네슘 나이트레이트 헥사하이드레이트(Magnesium Nitrate Hexahydrate) (Mg(NO₃)₂ · 6H₂O, 98%, DAE JUNG), 칼슘 카보네이트(Calcium Carbonate)(CaCO₃, 99.5%, JUNSEI), 알루미늄(Al) 전구체로 알루미늄 질산염인 알루미늄 나이트레이트 노나하이드레이트(Aluminum nitrate nonahydrate)(Al(NO₃)₃ · 9H₂O, 98%, SAMCHUN), 실리콘(Si) 전구체로 테트라에틸 오르소실리케이트(Tetraethyl orthosilicate)(Si(OC₂H₅)₄, 99%, ALDRICH)를 사용하였다. 에틸렌 글리콜을 90℃로 가열한 후 시트르산을 첨가하여 250rpm으로 1시간 동안 교반시켜 용해하였다. 이때 에틸렌 글리콜과 시트르산의 몰비는 4:1이 되도록 하였고 에틸렌 글리콜과 시트르산의 혼합 용매에 합성에 필요한 ME(금속(Metal) 성분을 포함하는 전구체들)의 총량을 CA(Citric Acid)와 1:5(ME의 총량:CA)의 몰비로 계산하였다. 여기서 상기 ME는 Mg(NO₃)₂ · 6H₂O, CaCO₃, Al(NO₃)₃ · 9H₂O 및 Si(OC₂H₅)₄를 의미한다. 에틸렌 글리콜과 시트르산의 혼합 용매에 Mg(NO₃)₂ · 6H₂O, CaCO₃, Al(NO₃)₃ · 9H₂O 및 Si(OC₂H₅)₄의 순서대로 각각 30분간 용해하였다. 이때, Mg(NO₃)₂ · 6H₂O, CaCO₃, Al(NO₃)₃ · 9H₂O 및 Si(OC₂H₅)₄는 6.87:18.78:28.25:46.09의 몰비로 첨가하여 용해하였는데, 이는 산화물에 대하여 중량%로 환산하였을 때는 MgO:CaO:Al₂O₃:SiO₂= 5:19:26:50의 비율을 이룬다. 반응이 완료된 용액은 히팅 멘틀(Heating Mantle)에서 300℃로 2시간 동안 가열하여 액체를 증발시켜 분말 상태로 만들었다. 이러한 분말을 분말전구체(powder precursor)라고 칭하였다. 가열 후에도 분말전구체에 잔존해 있는

유기물을 제거하기 위해 400℃에서 5시간 동안 열처리를 하였다. 유기물이 제거된 분말을 400~800℃에서 5시간 동안 하소시켜 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말을 합성하였다. 이렇게 합성된 비정질 세라믹 첨가제의 입도는 평균 입자 크기가 0.5μm 이었다.

[0036] (실시예 2)

[0037] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 1.0 wt%와 0.5 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0038] (실시예 3)

[0039] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 1.0 wt%와 1.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0040] (실시예 4)

[0041] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 1.0 wt%와 4.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0042] (실시예 5)

[0043] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 4.0 wt%와 1.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0044] (실시예 6)

[0045] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 2.0 wt%와 1.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0046] (실시예 7)

[0047] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말과 결정질 이트리아(Y₂O₃) 분말을 전체 혼합분말에 대해 각각 2.0 wt%와 3.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0048] (비교예 1)

[0049] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말만을 전체 혼합분말에 대해 1.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0050] (비교예 2)

[0051] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말만을 전체 혼합분말에 대해 5.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다.

[0052] (비교예 3)

[0053] 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 질화알루미늄 기판을 제조하되, 혼합분말 제조 시에 결정질의 이트리아 분말만을 전체 혼합분말에 대해 2.0 wt%가 되도록 칭량하여 혼합하였다. 또한, 최종 소결은 1,850℃에서 실시하여 소결체를 제조하였다.

[0054] 상기 실시예 및 비교예에서 만들어진 질화알루미늄 소결체에 대해 소결밀도, 열전도도, 굽힘강도 등을 분석하였

고 그 결과를 아래 표 3에서 정리하였다.

표 3

[0055]

구분	조성(wt%)			소결밀도 (g/cm ³)	열전도도 (W/mK)	굽힘강도 (MPa)	
	AlN	MCAS	Y ₂ O ₃			평균값	최대값
실시예1	97.0	1.0	2.0	3.27	118	472	485
실시예2	98.5	1.0	0.5	3.24	96	482	504
실시예3	98.0	1.0	1.0	3.26	106	460	473
실시예4	95.0	1.0	4.0	3.26	108	468	477
실시예5	95.0	4.0	1.0	3.23	95	450	465
실시예6	97.0	2.0	1.0	3.24	105	460	467
실시예7	95.0	2.0	3.0	3.19	96	440	456
비교예1	99.0	1.0	0.0	3.24	81	416	465
비교예2	95.0	5.0	0.0	3.15	68	406	467
비교예3	98.0	0.0	2.0	3.17	150	350	370

[0056]

(MCAS : 비정질의 MgO-CaO-Al₂O₃-SiO₂계 글래스 분말)

[0057]

상기 표에서 볼 수 있듯이, 비정질인 MCAS 분말만을 사용한 경우에 비해 결정질 이트리아 분말을 같이 첨가제로 사용한 경우 열전도도와 굽힘강도가 동시에 우수한 성질을 나타내는 것을 알 수 있다. 이렇게 결정질 이트리아 첨가제를 같이 사용함에 따라 열전도도가 높아지는 원인은 이트리아가 질화알루미늄에 불순물로 포함된 산소와 반응하여 이차상을 형성함으로써 질화알루미늄 고유의 열전도 능력을 충분히 끌어내기 때문이다. 이는 첨가제 조건에 따른 소결체의 단면에 대한 주사전자현미경 이미지인 도 2a 내지 2d를 참고하면 알 수 있는데, 도 2a는 MCAS만을 첨가하여 소결한 소결체(비교예 1)의 단면에 대한 주사전자현미경(SEM) 이미지이고, 도 2b는 MCAS 1.0 wt%와 Y₂O₃ 0.5 wt%가 포함된 소결체(실시예 2)의 단면에 대한 주사전자현미경(SEM) 이미지이며, 도 2c는 MCAS 1.0 wt%와 Y₂O₃ 1.0 wt%가 포함된 소결체(실시예 3)의 단면에 대한 주사전자현미경(SEM) 이미지이고, 도 2d는 MCAS 1.0 wt%와 Y₂O₃ 2.0 wt%가 포함된 소결체(실시예 1)의 단면에 대한 주사전자현미경(SEM) 이미지이다. 이미지에서 볼 수 있듯이 Y₂O₃의 첨가량이 증가할 수록 흰색의 이차상이 증가하고 있는 것을 볼 수 있고, 이에 따라 열전도도가 증가하는 것을 알 수 있다(도 3 참조). 실시예 1 내지 3에서 제조된 소결체에 대한 X선 회절분석을 실시한 결과에서도 질화알루미늄 이외에 질화알루미늄과 Y₂O₃의 반응에 의해 생성되는 이차상인 YAG(Yttrium aluminum garnet)상이 Y₂O₃ 양이 증가할 수록 같이 증가하는 것을 확인하였다(도 4 참조). MCAS는 비정질상으로 X선 회절분석으로는 관찰되지 않았다.

[0058]

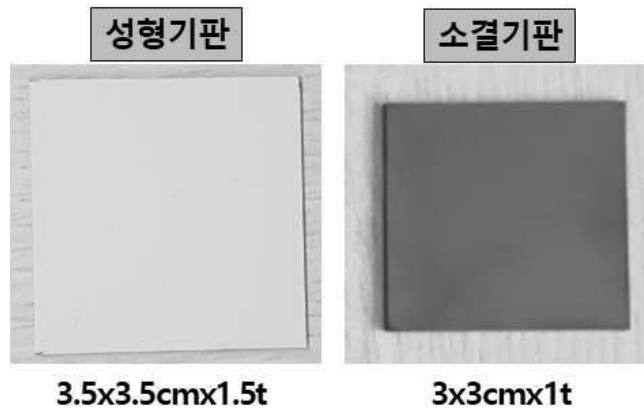
비교예 3에서 결정질 이트리아만을 사용한 경우에는 열전도도가 높긴 하지만 소결온도가 1,850℃로 실시예 1 내지 7에서의 소결온도 1,600℃ 보다 너무 높을 뿐만 아니라 강도 또한 현저하게 낮은 것을 볼 수 있다.

[0059]

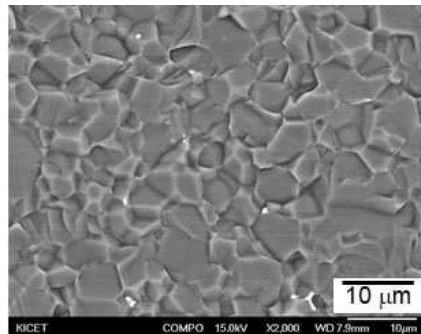
본 명세서에서는 본 발명이 일부 실시예들과 관련하여 설명되었지만, 본 발명이 속하는 기술분야의 당업자가 이해할 수 있는 본 발명의 정신 및 범위를 벗어나지 않는 범위에서 다양한 변형 및 변경이 이루어질 수 있다는 점을 알아야 할 것이다. 또한, 그러한 변형 및 변경은 본 명세서에 첨부된 특허청구의 범위 내에 속하는 것으로 생각되어야 한다.

도면

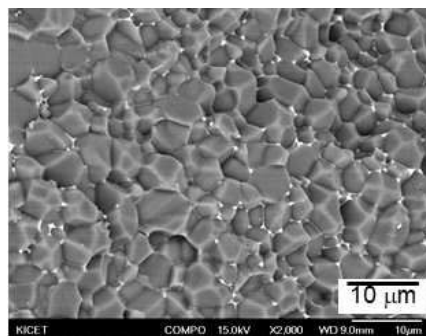
도면1



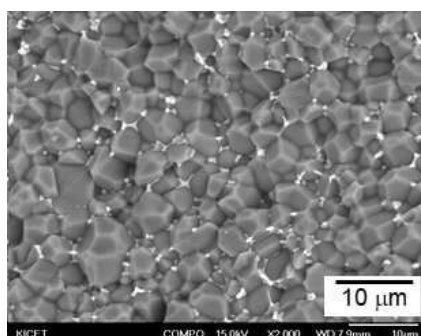
도면2a



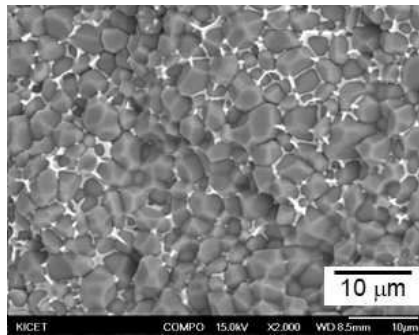
도면2b



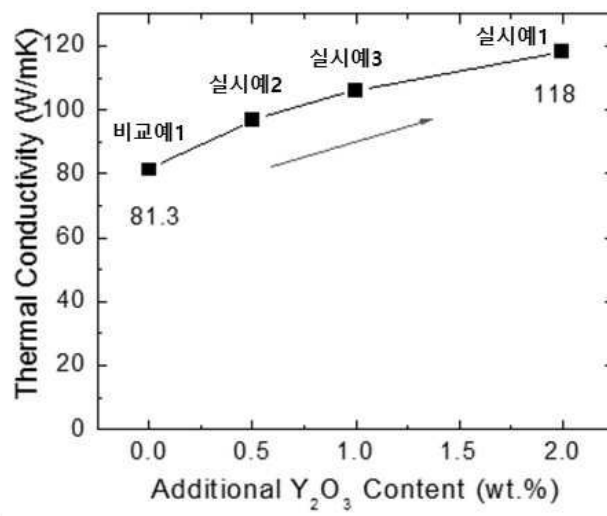
도면2c



도면2d



도면3



도면4

