(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0120509
(43) 공개일자 2024년08월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
*C04B 35/584* (2006.01) *C04B 35/64* (2006.01)
(52) CPC특허분류
*C04B 35/584* (2013.01)
*C04B 35/64* (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-0013238
(22) 출원일자 2023년01월31일
심사청구일자 2023년01월31일

(71) 출원인
**한국재료연구원**
경상남도 창원시 성산구 창원대로 797 (상남동)
(72) 발명자
**김하늘**
경상남도 창원시 성산구 원이대로878번길 9
**고재웅**
경상남도 창원시 성산구 대암로 8
*(뒷면에 계속)*
(74) 대리인
**이원희**

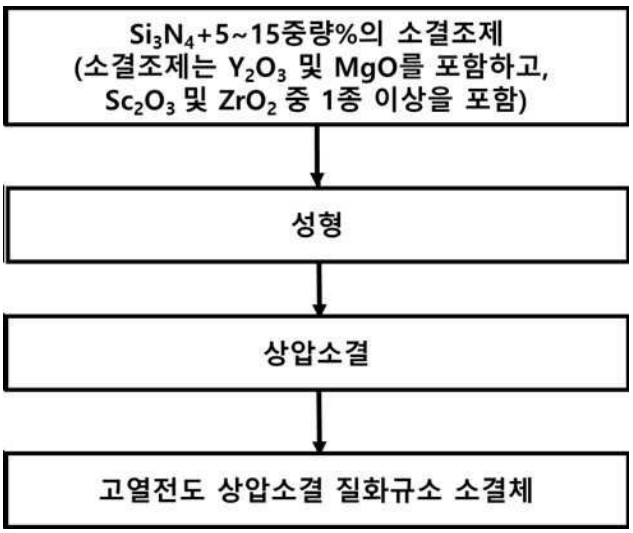
전체 청구항 수 : 총 18 항

(54) 발명의 명칭 **고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물 및 이를 이용한 질화규소 소결체의 제조방법**

## (57) 요 약

본 발명은 고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물 및 이를 이용한 질화규소 소결체의 제조방법에 관한 것으로 구체적으로는, 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고, 조성물 100 중량부에 대하여 상기 소결조제를 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함하는, 질화규소 소결체 제조용 조성물 및 이를 이용한 질화규소 소결체의 제조방법에 관한 것이다.

*대 표 도* - 도1



(52) CPC특허분류
*C04B 2235/3206* (2013.01)
*C04B 2235/3224* (2013.01)
*C04B 2235/3225* (2013.01)
*C04B 2235/3244* (2018.01)
*C04B 2235/658* (2013.01)
*C04B 2235/77* (2013.01)
*C04B 2235/9607* (2013.01)
(72) 발명자
**박영조**
경상남도 창원시 진해구 자은로64번길 39
**이재욱**
경상남도 창원시 성산구 창원대로1137번길 35
**마호진**
경상남도 창원시 성산구 대정로 138

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

| | |
|---|---|
| 과제고유번호 | 1415179176 |
| 과제번호 | 20014374 |
| 부처명 | 산업통상자원부 |
| 과제관리(전문)기관명 | 한국산업기술평가관리원 |
| 연구사업명 | 나노융합혁신제품기술개발사업 |
| 연구과제명 | 1000V급 파워 모듈의 안정적 구동을 위한 방열 핵심 부품 개발 |
| 기 여 율 | 1/1 |
| 과제수행기관명 | (주)아모텍 |
| 연구기간 | 2022.01.01 ~ 2022.12.31 |

# 명 세 서

## 청구범위

### 청구항 1

질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되,

상기 소결조제는 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고,

상기 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함하는, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 소결조제는

소결조제 100 중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO; 및

소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상;을 포함하는, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

### 청구항 3

제1항에 있어서,

상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$의 3성분으로 이루어진, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

### 청구항 4

제1항에 있어서,

상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$의 4성분으로 이루어진, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

### 청구항 5

제4항에 있어서,

상기 소결조제는

소결조제 100 중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO;

소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$;를 포함하는, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

**청구항 6**

제1항에 있어서,

상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$의 3성분으로 이루어진, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

**청구항 7**

제1항에 있어서,

상기 조성물은 고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물인, 질화규소 소결체 제조용 조성물.

**청구항 8**

제1항의 질화규소 소결체 제조용 조성물로 이루어진 혼합분말을 성형하는 단계; 및

상기 성형된 성형체를 상압(1기압)에서 소결하는 단계;를 포함하는, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 9**

제8항에 있어서,

상기 소결은 질소 분위기에서 수행되는, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 10**

제8항에 있어서,

상기 소결은 1700 내지 1900℃의 온도에서 수행되는, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 11**

제8항에 있어서,

상기 소결은 1 내지 24시간 동안 수행되는, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 12**

제8항에 있어서,

상기 질화규소 소결체 제조용 조성물은 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$ 의 3성분으로 이루어진, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 13**

제8항에 있어서,

상기 질화규소 소결체 제조용 조성물은 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$의 4성분으로 이루어진, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 14**

제8항에 있어서,

상기 질화규소 소결체 제조용 조성물은 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$의 3성분으로 이루어진, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 15**

제8항에 있어서,

상기 제조방법으로 제조된 질화규소 소결체는 90% 이상의 상대밀도를 갖는, 질화규소 소결체의 제조방법.

**청구항 16**

제1항의 질화규소 소결체 제조용 조성물을 이용하여 제조되며, 60W/mK 이상의 열전도도를 갖는, 질화규소 소결체.

**청구항 17**

제16항에 있어서,

상기 질화규소 소결체는 90% 이상의 상대밀도를 갖는, 질화규소 소결체.

**청구항 18**

제16항의 질화규소 소결체를 포함하는 세라믹 방열 부재.

## *발명의 설명*

### *기 술 분 야*

[0001] 본 발명은 고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물 및 이를 이용한 질화규소 소결체의 제조방법에 관한 것이다.

### *배 경 기 술*

[0003] 근래 전자 패키지의 소형화, 집적화, 대면적화에 의해 단위면적당 발열량이 급증하면서 열에 의한 제품 수명 및 품질 저하 문제가 중요한 이슈로 부각되고 있다. 특히 전력 변환 및 제어를 담당하는 전력반도체, 고휘도 LED 기반 조명 및 대형 디스플레이 등의 일부 산업에서는 발생하는 열을 어떻게 효과적으로 방출하느냐가 기술 혁신의 장벽으로 작용하고 있다.

[0004] 전기적 절연성과 고열전도성을 동시에 발현하는 세라믹 기판 소재는 전기차, 레이저 발진기, 반도체 제조 디바이스의 반응기 및 정밀 기계 부품의 회로 기판과 같은 응용 분야에 히트 싱크로서 적합한데, 세라믹 방열 기판 중 기존에 적용되던 알루미나는 고유 열전도도가 낮은 한계가 존재한다. 이를 대체하기 위한 소재로 개발된 질화 알루미늄(AlN)은 200 W/mK 이상의 고 열전도도를 달성할 수 있지만 낮은 기계적 특성 및 수분과의 반응성에 취약한 문제가 존재한다.

[0005] 한편, 질화규소는 고인성 고강도를 겸비한 대표적인 구조 세라믹스이며 동시에 상온 단결정 열전도도가 180 W/mK 이상인 고열전도 소재로서 1990년대부터 고열전도도 기판 적용을 위한 연구가 진행되어 왔다. 하지만 질화

규소 소결체는 소결로 인해 열전도성이 낮은 비정질상이 형성되어 열전도율을 낮추고 또한 소결 방법으로 상압 소결, 가스압 소결, 열간 가압 소결 등이 사용되는데 소결 방법마다 질화규소 입자 배향이 달라져 열전도율이 달라지는 점, 및 상기 소결체는 질화규소와 함께 소결조제로서 희토류 산화물과 산화 마그네슘을 포함하는 혼합 시스템으로 구성되는데 소결 시 질화규소 결정 내에 고용된 산소, 알루미늄과 같은 불순물이 포논 산란을 일으키는 등의 원인으로 인해 다른 질화 알루미늄(AlN) 소결체, 산화 베릴륨(BeO) 소결체나 탄화규소(SiC) 소결체 등과 비교해서 현저하게 낮게 나타난다. 이에 특히 방열성이 요구되는 반도체용 기판 등의 용도로 실용화되지 못해 열전도도를 향상시키기 위한 연구가 진행되고 있다.

[0006] 이와 관련하여 대한민국 등록특허 제10-2052592호에서는 고열전도 질화규소 소결체의 제조방법으로서 실리콘을 출발 원료로 사용하여 질화-후소결 공정을 함으로써, 소결체 내의 산소량을 저감시켜 고열전도도 발현에 유리하도록 하는 고열전도 질화규소 소결체의 제조방법으로서 Si의 완전 질화를 기준으로 $xSi_3N_4$-$yA_2O_3$-$zB_2O_3$ (여기서, x, y, z는 mol%이고, x, y, z > 0, A 및 B는 Y, Sc, Nd 및 Yb로 이루어진 그룹 중에서 선택된 희토류 금속)의 조성식을 따르도록 Si, $A_2O_3$, 및 $B_2O_3$ 원료 분말을 혼합 후 성형 및 질화하고, 상기 질화된 성형체를 1900 ℃의 온도 및 0.9 MPa $N_2$ 가스압 분위기에서 소결하여 열전도도를 향상시킬 수 있음을 개시한 바 있다.

[0007] 하지만 열전도율을 질화규소의 이론치에 근접시기 위해, 또한 이를 보다 간편하고 경제적으로 제조하기 위해 질화규소($Si_3N_4$) 소결체의 열전도도를 향상시키기 위한 연구 개발이 여전히 요구되고 있다.

[0008] 본 발명자들은 고열전도를 갖는 질화규소 소결체를 제조하기 위해 다양한 소결조제의 조성 및 소결방법에 대해 연구하던 중 질화규소에 5중량% 이상 포함하는 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하도록 한 후, 상압 소결함으로써 열전도도가 우수한 질화규소 소결체를 제조할 수 있음을 확인하고 본 발명을 완성하였다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0010] (특허문헌 0001) 대한민국 등록특허 제10-2052592호

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0011] 일 측면에서의 목적은

[0012] 고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물 및 이를 이용한 질화규소 소결체의 제조방법을 제공하는 데 있다.

### 과제의 해결 수단

[0014] 상기 목적을 달성하기 위하여,

[0015] 일 측면에서는,

[0016] 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되,

[0017] 상기 소결조제는 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고,

[0018] 상기 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함하는, 질화규소 소결체 제조용 조성물이 제공된다.

[0020] 상기 소결조제는

[0021] 소결조제 100 중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

[0022] 소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO; 및

[0023] 소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상;을 포함할 수 있다.

[0025] 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$의 3성분으로 이루어질 수 있다.

[0027] 또한 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$의 4성분으로 이루어질 수 있다.

[0028] 이때 상기 소결조제는

[0029] 소결조제 100 중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

[0030] 소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO; 및

[0031] 소결조제 100 중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$;를 포함할 수 있다.

[0033] 또한, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$의 3성분으로 이루어질 수 있다.

[0035] 상기 조성물은 고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물일 수 있다.

[0037] 다른 일 측면에서는,

[0038] 상기 질화규소 소결체 제조용 조성물로 이루어진 혼합분말을 성형하는 단계; 및

[0039] 상기 성형된 성형체를 상압에서 소결하는 단계;를 포함하는, 질화규소 소결체의 제조방법이 제공된다.

[0041] 상기 소결은 질소 분위기에서 수행될 수 있다.

[0042] 상기 소결은 1700 내지 1900℃의 온도에서 수행될 수 있다.

[0043] 상기 소결은 1 내지 24시간 동안 수행될 수 있다.

[0045] 상기 질화규소 소결체 제조용 조성물은 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$의 3성분으로 이루어질 수 있다.

[0047] 또한, 상기 질화규소 소결체 제조용 조성물은 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$의 4성분으로 이루어질 수 있다.

[0049] 또한, 상기 질화규소 소결체 제조용 조성물은 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$의 3성분으로 이루어질 수 있다.

[0051] 상기 제조방법으로 제조된 질화규소 소결체는 90% 이상의 상대밀도를 갖는다.

[0053] 또 다른 일 측면에서는,

[0054] 상기 질화규소 소결체 제조용 조성물을 이용하여 제조되며, 60W/mK 이상의 열전도도를 갖는, 질화규소 소결체가 제공된다.

[0055] 상기 질화규소 소결체는 90% 이상의 상대밀도를 갖는다.

[0057] 또 다른 일 측면에서는

[0058] 질화규소 소결체를 포함하는 세라믹 방열 부재가 제공된다.

## *발명의 효과*

[0060] 본 발명은 고열전도 질화규소 소결체를 제공한다.

[0061] 본 발명은 상압 및 1900℃ 이하의 상대적은 가혹하지 않은 소결 조건에서 고열전도 질화규소 소결체를 용이하게 제조할 수 있다.

[0062] 본 발명의 질화규소 소결체는 열전도성 및 기계적 강도가 우수해 파워 모듈용 방열 기판에 적용할 경우, 기계적 내구성을 높이는 동시에 파워 모듈로부터 발생하는 열을 효율적으로 방출(방열)할 수 있는 장점이 있다.

[0064] 본 발명의 효과들은 이상에서 언급한 효과들로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 효과들은 아래의 기재로부터 통상의 기술자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

## *도면의 간단한 설명*

[0066] 도 1은 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체의 제조방법의 플로우 차트이다.

도 2는 실시 예 및 비교 예에 따라 제조된 질화규소 소결체의 열전도도를 나타낸 그래프이다.

## *발명을 실시하기 위한 구체적인 내용*

[0067] 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명의 바람직한 실시 예를 설명한다. 그러나 본 발명의 실시 예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 이하에서 설명하는 실시 예로 한정되는 것은 아니다. 또한, 이하의 실시 예는 당해 기술분야에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 더욱 완전하게 설명하기 위해서 제공되는 것이다. 또한, 명세서 전체에서 어떤 구성요소를 "포함"한다는 것은 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성요소를 더 포함할 수 있다는 것을 의미한다.

[0069] 일 측면에서는,

[0070] 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되,

[0071] 상기 소결조제는 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고,

[0072] 상기 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함하는, 질화규소 소결체 제조용 조성물이 제공된다.

[0074] 이하, 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체 제조용 조성물을 상세히 설명한다.

[0076] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체 제조용 조성물은 보다 구체적으로는 고열전도 상압 소결 질화규소 소결체 제조용 조성물이다.

[0077] 이때 "상압 소결"은 "1기압 분위기에서의 소결"을 의미한다.

[0079] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체 제조용 조성물은 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고, 상기 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함함으로써 상압 소결로 고열전도성을 나타내는 질화규소 소결체를 제조할 수 있다.

[0080] 보다 바람직하게는 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체 제조용 조성물은 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고, 상기 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함하고 상압 분위기 및 1700 내지 1900℃, 1700 내지 1900℃ 미만 또는 1750 내지 1850℃의 온도에서 소결함으로써 90% 이상의 상대밀도 및 60W/mK 이상의 열전도도를 갖는 질화규소 소결체를 제조할 수 있다.

[0082] 상기 조성물에서 상기 소결조제는

[0083] 소결조제 100중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

[0084] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO; 및

[0085] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상;을 포함할 수 있다.

[0087] 상기 조성물에서 상기 소결조제는 바람직하게는 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$로 이루어진 3성분 소결조제일 수 있다.

[0088] 이때, 상기 조성물은 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함할 수 있고, 6 내지 13 중량부의 함량으로 포함할 수 있고, 7 내지 11 중량부의 함량으로 포함할 수 있으며, 상기 조성물로 제조된 질화규소 소결체는 90% 이상, 93% 이상, 95% 이상, 100% 미만 또는 99% 이하의 상대밀도를 가질 수 있고, 60W/mK 이상, 67W/mK 이상, 69W/mK 이상, 70W/mK 이상, 72W/mK 이상, 73W/mK 이상, 95W/mK 이하의 열전도도를 가질 수 있다.

[0090] 또한, 이때 $Y_2O_3$와 MgO; 및 $Sc_2O_3$;를 8:2 내지 8:4의 중량비로 포함할 수 있고, 바람직하게는 8:3의 중량비로 포함할 수 있으며, $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함할 수 있다.

[0092] 또한. 상기 조성물에서 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$의 4성분으로 이루어질 수 있다.

[0093] 이때, 상기 소결조제는

[0094] 소결조제 100중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

[0095] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO; 및

[0096] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$;를 포함할 수 있다.

[0098] 또한, 이때 $Y_2O_3$와 MgO; 및 $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 8:2 내지 8:4의 중량비로 포함할 수 있고, 바람직하게는 8:3의 중량비로 포함할 수 있으며, $Y_2O_3$; MgO; 및 $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함할 수 있다. 이때 상기 $Sc_2O_3$ 및

$ZrO_2$는 3:1 내지 1:3의 중량비로 포함될 수 있다. 일례로 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$는 5:3:1.5:1.5의 중량비로 포함될 수 있다.

[0100] 또한. 상기 조성물에서 상기 소결조제는 상기 소결조제는 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$의 3성분으로 이루어질 수 있다.

[0101] 이때, 상기 조성물은 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함할 수 있고, 6 내지 15 중량부의 함량으로 포함할 수 있고, 7 내지 15 중량부의 함량으로 포함할 수 있고, 10 내지 12 중량부의 함량으로 포함할 수 있으며, 상기 조성물로 제조된 질화규소 소결체는 95% 이상, 96% 이상, 97% 이상, 98% 이상, 100% 미만 또는 99% 이하의 상대밀도를 가질 수 있고, 60W/mK 이상, 70W/mK 이상, 75W/mK 이상, 95W/mK 이하의 열전도도를 가질 수 있다.

[0103] 또한, 이때 $Y_2O_3$와 MgO; 및 $ZrO_2$;를 8:2 내지 8:4의 중량비로 포함할 수 있고, 바람직하게는 8:3의 중량비로 포함할 수 있으며, $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 5:3:3의 중량비로 포함할 수 있다.

[0105] 다른 일 측면에서는

[0106] 질화규소 소결체 제조용 조성물로 이루어진 혼합분말을 성형하는 단계; 및

[0107] 상기 성형된 성형체를 상압에서 소결하는 단계;를 포함하는, 질화규소 소결체의 제조방법이 제공된다.

[0109] 이하, 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체의 제조방법을 도면을 참조하여 상세히 설명한다.

[0110] 도 1은 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체의 제조방법의 플로우 차트이다.

[0112] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체의 제조방법은 전술한 질화규소 소결체 제조용 조성물을 이용하여 질화규소 소결체를 제조함으로써, 보다 높은 열전도도를 갖는 질화규소 소결체를 제조한 것을 특징으로 한다.

[0114] 먼저, 질화규소 소결체 제조용 조성물로 이루어진 혼합분말을 성형하는 단계를 수행한다.

[0115] 이때 상기 혼합분말은 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하는 원료분말을 혼합하되 상기 소결조제를 원료분말 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부가 되도록 혼합한 것이다.

[0117] 이때, 상기 소결조제는

[0118] 소결조제 100중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

[0119] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO; 및

[0120] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상;을 포함할 수 있다.

[0122] 상기 조성물에서 상기 소결조제는 바람직하게는 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$로 이루어진 3성분 소결조제일 수 있고, 이때 $Y_2O_3$와 MgO; 및 $Sc_2O_3$;를 8:2 내지 8:4의 중량비로 포함할 수 있고, 바람직하게는 8:3의 중량비로 포함할 수 있으며, $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함할 수 있다.

[0124] 또한, 상기 조성물에서 상기 소결조제는 바람직하게는 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$의 4성분으로 이루어질 수 있다.

[0125] 이때, 상기 소결조제는

[0126] 소결조제 100중량부에 대하여 40 내지 50 중량부의 $Y_2O_3$;

[0127] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 MgO;

[0128] 소결조제 100중량부에 대하여 25 내지 30 중량부의 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$;를 포함할 수 있다.

[0130] 또한, 이때 $Y_2O_3$와 MgO; 및 $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 8:2 내지 8:4의 중량비로 포함할 수 있고, 바람직하게는 8:3의 중량비로 포함할 수 있으며, $Y_2O_3$; MgO; 및 $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함할 수 있다. 이때 상기 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$는 2:1 내지 1:2의 중량비로 포함될 수 있다. 이에 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$는 5:3:1:2의 중량비로 포함되거나, 5:3:1.5:1.5의 중량비로 포함되거나, 5:3:2:1의 중량비로 포함될 수 있다.

[0132] 또한, 상기 조성물에서 상기 소결조제는 바람직하게는 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$로 이루어진 3성분 소결조제일 수 있고, 이때 $Y_2O_3$와 MgO; 및 $ZrO_2$;를 8:2 내지 8:4의 중량비로 포함할 수 있고, 바람직하게는 8:3의 중량비로 포함할 수 있으며, $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 5:3:3의 중량비로 포함할 수 있다.

[0134] 이때, 상기 혼합분말을 형성하는 원료분말의 혼합 방법은 무수 알코올(anhydrous alcohol)을 첨가하여 습식 혼합한 후, 24시간 내지 36시간 고 에너지 밀링법으로 수행할 수 있으나 이에 제한된 것은 아니며 균일한 혼합분말을 형성할 수 있는 종래의 혼합 방법이 사용될 수 있다.

[0136] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체의 제조방법은 상기 혼합으로 형성된 혼합분말을 건조 및 분급하고 이후 성형하여 성형체를 제조할 수 있다.

[0137] 일례로, 상기 혼합분말을 회전증발기 및/또는 오븐을 이용하여 건조시켜 혼합물에 함유된 수분 및/또는 알코올을 증발시킨 후, 50 ~ 200 메쉬(mesh) 사이즈의 체로 걸러내어 분급하고 이후 성형하여 성형체를 제조할 수 있다.

[0138] 이때 상기 성형은 압축 성형의 방법이 수행될 수 있으나 이에 제한된 것은 아니며 통상의 세라믹스 성형 방법이면 모두 사용 가능하다. 예를 들면, 일축가압성형, 정수압상형 (cold isostatic pressing), 일축 가압 성형 후 정수압 성형, 주입성형 (slip casting), 테이프성형(tape casting), 압출 성형(extrusion), 젤 캐스팅 (gel casting) 및 사출성형 (injection molding) 등이 사용될 수 있다.

[0140] 다음, 상기 성형된 성형체를 상압에서 소결하는 단계를 수행한다.

[0141] 이때, 상기 성형체를 소결하는 방법은 압력을 가하지 않고, 1기압의 질소 분위기에서 소결하는 것이 바람직하며, 1700 내지 1900℃, 1700 내지 1900℃ 미만 또는 1750 내지 1850℃의 온도범위에서 1 내지 24시간, 2 내지 12시간, 3 내지 9시간 동안 소결하는 것이 바람직하다.

[0142] 이때 만약 소결하는 온도가 1750℃보다 낮으면, 소결과정에서 치밀화가 충분히 일어나지 않아 소결 후 형성된 소결체의 상대밀도가 90% 미만으로 낮을 수 있고, 소결하는 온도가 1900℃ 보다 높으면 질화규소의 열분해를 막기 위해 더 높은 질소압력을 요구하기 때문에 에너지 및 고압질소 등의 소모가 많아 비경제적이고 소결 과정에서 일부 질화규소가 규소와 질소로 분해되 소결체의 기계적/열적 특성이 저하되는 문제가 발생될 수 있다.

[0144] 또한, 상기 소결 시간이 1시간 미만일 경우 소결과정에서 치밀화가 충분히 일어나지 않아 소결 후 형성된 소결체의 상대밀도가 90% 미만으로 낮을 수 있고, 상기 소결 시간이 24시간을 초과할 경우 비경제적일 뿐만 아니라 더 이상의 소결 효과를 기대하기 어려울 수 있다.

[0146] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체의 제조방법은 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하고, 상기 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함함으로써 상압 분위기 및 1700 내지 1900℃, 1700 내지 1900℃ 미만 또는 1750 내지 1850℃의 온도 조건에서의 상압 소결로 90% 이상의 상대밀도 및 60W/mK 이상의 열전도도를 갖는 질화규소 소결체를 제조할 수 있다.

[0148] 또 다른 일 측면에서는

[0149] 상기 제조방법으로 제조되며, 60W/mK 이상의 열전도도를 갖는, 질화규소 소결체가 제공된다.

[0151] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체는 67W/mK 이상, 69W/mK 이상, 70W/mK 이상, 72W/mK 이상, 73W/mK 이상, 95W/mK 이하의 열전도도를 가질 수 있다.

[0152] 또한 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체는 60W/mK 이상, 70W/mK 이상, 75W/mK 이상, 95W/mK 이하의 열전도도를 가질 수 있다.

[0154] 또한, 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체는 90% 이상, 93% 이상, 95% 이상, 100% 미만 또는 99% 이하의 상대밀도를 가질 수 있다.

[0155] 또한, 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체는 95% 이상, 96% 이상, 97% 이상, 98% 이상, 100% 미만 또는 99% 이하의 상대밀도를 가질 수 있다.

[0157] 이때 상대 밀도는, 질화규소 소결체의 제조 방법에서 원료의 조성으로부터 구한 계산 밀도를 이론 밀도라고 했을 때, 상기 이론 밀도에 대한 질화규소 소결체에 대해 아르키메데스법에 의해 측정한 밀도의 백분율을 의미한다.

[0159] 또 다른 일 측면에서는 질화규소 소결체를 포함하는 방열 부재가 제공된다.

[0160] 상기 질화규소 소결체는 기계적 강도 및 열전도도가 높아, 각종 방열 기판; 파워 모듈 기판(차량 탑재용, 전철용, 대전력 반도체용),펠티에 소자용 전열판, 또는 각종의 발열 소자용 방열 부재(heat sink) 등의 전자 부품용 부재에 적합하게 사용될 수 있다.

[0162] 이하, 실시 예 및 실험 예를 통하여 본 발명을 상세하게 설명한다.

[0163] 단, 하기 실시 예 및 실험 예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용이 하기의 실시 예에 의해 한정되는 것은 아니다.

[0164] 표 1

| | 샘플명 (소결조제의 함량) | Weight (g) | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | $Si_3N_4$ | $Y_2O_3$ | MgO | $Sc_2O_3$ |
| 실시예 1 | 5YMSc(533_5%) | 30 | 0.7177 | 0.4306 | 0.4306 |
| 실시예 2 | 7YMSc(533_7%) | 30 | 1.0264 | 0.6158 | 0.6158 |
| 실시예 3 | 11YMSc(533_11%) | 30 | 1.6854 | 1.0112 | 1.0112 |
| 실시예 4 | 15YMSc(533_15%) | 30 | 2.0455 | 1.2273 | 1.2273 |

표 2

[0165]

| | $Si_3N_4$ | $Y_2O_3$ | $Sc_2O_3$ | $ZrO_2$ | MgO |
|---|---|---|---|---|---|
| 실시예 5(7YMZSc-1) | 27.9 | 0.96 | 0.1425 | 0.4275 | 0.57 |
| 실시예 6(7YMZSc-2) | 27.9 | 0.96 | 0.285 | 0.285 | 0.57 |
| 실시예 7(7YMZSc-3) | 27.9 | 0.96 | 0.4275 | 0.1425 | 0.57 |

표 3

[0166]

| | 샘플명 (소결조제의 함량) | Weight (g) | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | $Si_3N_4$ | $Y_2O_3$ | MgO | $ZrO_2$ |
| 실시예 8 | 5YMZ(533_5%) | 30 | 0.7177 | 0.4306 | 0.4306 |
| 실시예 9 | 7YMZ(533_7%) | 30 | 1.0264 | 0.6158 | 0.6158 |
| 실시예 10 | 11YMZ(533_11%) | 30 | 1.6854 | 1.0112 | 1.0112 |
| 실시예 11 | 15YMSc(533_15%) | 30 | 2.0455 | 1.2273 | 1.2273 |

[0168] <실시 예 1> 5YMSc

[0169] - 실시 예 1-1

[0170] : 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 각각 상기 표 1의 혼합비로 혼합하여 95중량%의 $Si_3N$ 및 5중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하였다.

[0171] 상기 혼합분말을 에탄올에 혼합하여 $Si_3N_4$ 2mm 볼로 200rpm 에서 48시간 동안 밀링하였다. 밀링된 혼합 분말을 회전증발기에서 80 ℃의 온도로 건조한 후 105 ℃의 오븐에서 24 시간 동안 건조하고, 100-mesh 시브로 선별한 후 직경 15 ㎜인 몰드를 사용하여 200 MPa의 압력에서 냉간 정수압 성형하였다.

[0172] 이후 상기 성형된 성형체를 리드에 한개의 홀이 있는 흑연 도가니 내에 넣고 1750℃의 온도 및 1기압의 $N_2$ 분위기에서 6 시간동안 소결하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0174] - 실시 예 1-2

[0175] : 상기 실시 예 1-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0177] - 실시 예 1-3

[0178] : 상기 실시 예 1-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0180] <실시 예 2> 7YMSc

[0181] - 실시 예 2-1

[0182] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 각각 상기 표 1의 혼합비로 혼합하여 93중량%의 $Si_3N$ 및 7중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0184] - 실시 예 2-2

[0185] : 상기 실시 예 2-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 2-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0187] - 실시 예 2-3

[0188] : 상기 실시 예 2-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 2-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0190] <실시 예 3> 11YMSc

[0191] - 실시 예 3-1

[0192] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 각각 상기 표 1의 혼합비로 혼합하여 89중량%의 $Si_3N$ 및 11중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0194] - 실시 예 3-2

[0195] : 상기 실시 예 3-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 3-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0197] - 실시 예 3-3

[0198] : 상기 실시 예 3-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 3-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0200] <실시 예 4> 15YMSc

[0201] - 실시 예 4-1

[0202] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 각각 상기 표 1의 혼합비로 혼합하여 85중량%의 $Si_3N$ 및 15중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0204] - 실시 예 4-2

[0205] : 상기 실시 예 4-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 4-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0207] - 실시 예 4-3

[0208] : 상기 실시 예 4-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 4-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0210] <실시 예 5> 7YMZSc-1

[0211] - 실시 예 5-1

[0212] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 2의 혼합비로 혼합하여 93중량%의 $Si_3N$ 및 7중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$; MgO; $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함하되 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 1:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0214] - 실시 예 5-2

[0215] : 상기 실시 예 5-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 5-1과 동일한 방법을 수행하여, 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0217] - 실시 예 5-3

[0218] : 상기 실시 예 5-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 5-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0220] <실시 예 6> 7YMZSc-2

[0221] - 실시 예 6-1

[0222] : 상기 실시 예 5-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 2의 혼합비로 혼합하여 93중량%의 $Si_3N$ 및 7중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$; MgO; $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함하되 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 1:1의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 5-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0224] - 실시 예 6-2

[0225] : 상기 실시 예 6-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 6-1과 동일한 방법을 수행하여, 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0227] - 실시 예 6-3

[0228] : 상기 실시 예 5-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 5-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0230] <실시 예 7> 7YMZSc-3

[0231] - 실시 예 7-1

[0232] : 상기 실시 예 5-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 2의 혼합비로 혼합하여 93중량%의 $Si_3N$ 및 7중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$; MgO; $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함하되 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 3:1의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 5-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0234] - 실시 예 7-2

[0235] : 상기 실시 예 7-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 7-1과 동일한 방법을 수행하여, 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0237] - 실시 예 7-3

[0238] : 상기 실시 예 7-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 7-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0240] <실시 예 8> 5YMZ

[0241] - 실시 예 8-1

[0242] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 3의 혼합비로 혼합하여 95중량%의 $Si_3N$ 및 5중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$; MgO; $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0244] - 실시 예 8-2

[0245] : 상기 실시 예 8-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 8-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0247] - 실시 예 8-3

[0248] : 상기 실시 예 8-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 8-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0250] <실시 예 9> 7YMZ

[0251] - 실시 예 9-1

[0252] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 3의 혼합비로 혼합하여 93중량%의 $Si_3N$ 및 7중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0254] - 실시 예 9-2

[0255] : 상기 실시 예 9-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 9-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0257] - 실시 예 9-3

[0258] : 상기 실시 예 9-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 9-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0260] <실시 예 10> 11YMZ

[0261] - 실시 예 10-1

[0262] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 3의 혼합비로 혼합하여 89중량%의 $Si_3N$ 및 11중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0264] - 실시 예 10-2

[0265] : 상기 실시 예 10-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 10-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0267] - 실시 예 10-3

[0268] : 상기 실시 예 10-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 10-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0270] <실시 예 11> 15YMZ

[0271] - 실시 예 11-1

[0272] : 상기 실시 예 1-1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 각각 상기 표 3의 혼합비로 혼합하여 85중량%의 $Si_3N$ 및 15중량%의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 5:3:3의 중량비로 포함하는 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0274] - 실시 예 11-2

[0275] : 상기 실시 예 11-1에서, 소결 온도를 1800℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 11-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0277] - 실시 예 11-3

[0278] : 상기 실시 예 11-1에서, 소결 온도를 1850℃로 변경한 것을 제외하고 실시 예 11-1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

*표 4*

[0280]

| | 샘플명 (소결조제함량) | $Si_3N_4$ 대비 wt% | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | 조성 | $Y_2O_3$ | MgO | $Nb_2O_3$ | $Sc_2O_3$ | $ZrO_2$ | $TiO_2$ | $Yb_2O_3$ |
| 실시예 1 | 5Sc(533_5%) | 2.3 | 1.4 | - | 1.4 | - | - | - |
| 실시예 2 | 7Sc(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | 1.9 | - | - | - |
| 실시예 3 | 11Sc(533_11%) | 5.0 | 3.0 | - | 3.0 | - | - | - |
| 실시예 4 | 15Sc(533_15%) | 6.8 | 4.1 | - | 4.1 | - | - | - |
| 실시예 5 | 7ZSc(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | 0.475 | 1.425 | - | - |
| 실시예 6 | 7ZSc(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | 0.95 | 0.95 | - | - |
| 실시예 7 | 7ZSc(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | 1.425 | 0.475 | - | - |

| | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 실시예 8 | 5Z(533_5%) | 2.3 | 1.4 | - | | 1.4 | - | - |
| 실시예 9 | 7Z(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | | 1.9 | - | - |
| 실시예 10 | 11Z(533_11%) | 5.0 | 3.0 | - | | 3.0 | - | - |
| 실시예 11 | 15Z(533_15%) | 6.8 | 4.1 | - | | 4.1 | - | - |
| 비교예 1 | 8YM | 5 | 3 | - | - | - | - | - |
| 비교예 2 | 11YM | 6.8 | 4.1 | - | - | - | - | - |
| 비교예 3 | 5Nb(533_5%) | 2.3 | 1.4 | 1.4 | - | - | - | - |
| 비교예 4 | 7Nb(533_7%) | 3.2 | 1.9 | 1.9 | - | - | - | - |
| 비교예 5 | 11Nb(533_11%) | 5.0 | 3.0 | 3.0 | - | - | - | - |
| 비교예 6 | 15Nb(533_15%) | 6.8 | 4.1 | 4.1 | - | - | - | - |
| 비교예 7 | 5Ti(533_5%) | 2.3 | 1.4 | - | - | - | 1.4 | - |
| 비교예 8 | 7Ti(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | - | - | 1.9 | - |
| 비교예 9 | 11Ti(533_11%) | 5.0 | 3.0 | - | - | - | 3.0 | - |
| 비교예 10 | 15Ti(533_15%) | 6.8 | 4.1 | - | - | - | 4.1 | - |
| 비교예 11 | 5Yb(533_5%) | 2.3 | 1.4 | - | - | - | - | 1.4 |
| 비교예 12 | 7Yb(533_7%) | 3.2 | 1.9 | - | - | - | - | 1.9 |
| 비교예 13 | 11Yb(533_11%) | 5.0 | 3.0 | - | - | - | - | 3.0 |
| 비교예 14 | 15Yb(533_15%) | 6.8 | 4.1 | - | - | - | - | 4.1 |
| 비교예 15 | 1.89Sc | 0.41 | 0.73 | - | 0.75 | - | - | - |
| 비교예 16 | 3.84Sc | 0.83 | 1.49 | - | 1.52 | - | - | - |

[0282] <비교 예 1 내지 14>

[0283] 상기 실시 예 1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제를 혼합하되, 상기 표 4에서와 같이 상기 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO만을 혼합하되 소결조제의 함량을 8중량%(비교예 1) 또는 11중량%(비교예 2)로 달리하거나, 또는 $Y_2O_3$, MgO 및 X(여기서, X는 $Nb_2O_3$,$TiO_2$ 또는 $Yb_2O_3$)를 5:3:3의 중량비로 혼합하되 소결조제의 함량을 5중량%, 7중량%, 11중량%, 15중량%로(비교예 3 내지 비교예 14) 달리하여 혼합분말을 준비하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0285] <비교 예 15> 1.89YMSc

[0286] 상기 실시 예 1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 혼합하되, $Si_3N_4$와 소결조제의 함량을 상기 표 4에서와 같이 98.11중량%(96.5mol%)의 $Si_3N$ 및 1.89중량%(3.5mol%)의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 0.41:0.73:0.75의 중량비(0.25:2.5:0.75의 몰비)로 달리하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0288] <비교 예 16> 3.84YMSc

[0289] 상기 실시 예 1에서, 원료분말로서 $Si_3N_4$와 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 혼합하되, $Si_3N_4$와 소결조제의 함량을 상기 표 4에서와 같이 96.16중량%(93mol%)의 $Si_3N$ 및 3.84중량%(7mol%)의 소결조제를 포함하고, 소결조제 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 0.83:1.49:1.52의 중량비(0.5:5:1.5의 몰비)로 달리하는 것으로 변경한 것을 제외하고 실시 예 1과 동일한 방법을 수행하여 질화규소 소결체를 제조하였다.

[0291] <실험 예 1>

[0292] 상기 실시 예 1 내지 7 및 비교 예 1 내지 16에서 제조한 질화규소 소결체의 밀도 및 열전도도를 측정하고 그 결과를 아래의 표 5에 나타내었다.

표 5

[0293]

| | 샘플명 (소결조제 함량) | 1750℃ | | | 1800℃ | | | 1850℃ | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | 이론밀도 ($g/cm^3$) | 상대밀도 (%) | 열전도도 (W/mK) | 이론밀도 ($g/cm^3$) | 상대밀도 (%) | 열전도도 (W/mK) | 이론밀도 ($g/cm^3$) | 상대밀도 (%) | 열전도도 (W/mK) |
| 실시예 1 | 5Sc (533_5%) | 3.24 | 93.6 | 69.8 | 3.24 | 94.7 | 83.1 | 3.24 | 95.1 | 85.0 |
| 실시예 2 | 7Sc (533_7%) | 3.25 | 95.1 | 73.1 | 3.25 | 95.9 | 84.4 | 3.25 | 95.8 | 86.8 |
| 실시예 3 | 11Sc (533_11%) | 3.29 | 97.8 | 72.5 | 3.29 | 96.4 | 81.4 | 3.29 | 96.0 | 82.2 |
| 실시예 4 | 15Sc (533_15%) | 3.30 | 98.2 | 67.9 | 3.30 | 96.5 | 75.3 | 3.30 | 95.7 | 78.2 |
| 실시예 5 | 7ZSc-1 | | | 74.93 | 3.27 | 97.2 | 78.08 | 3.27 | 97.7 | 83.09 |
| 실시예 6 | 7ZSc-2 | | | 79.06 | 3.26 | 96.7 | 80.52 | 3.26 | 97.3 | 86.77 |
| 실시예 7 | 7ZSc-3 | | | 77.10 | 3.26 | 96.8 | 78.96 | 3.26 | 97.3 | 91.08 |
| 실시예 8 | 5Z (533_5%) | 3.25 | 96.6 | 67.2 | 3.25 | 95.5 | 72.8 | 3.25 | 96.6 | 74.2 |
| 실시예 9 | 7Z (533_7%) | 3.27 | 95.8 | 67.7 | 3.27 | 97.2 | 71.5 | 3.27 | 97.3 | 78.5 |
| 실시예 10 | 11Z (533_11%) | 3.32 | 98.0 | 70.9 | 3.32 | 97.6 | 72.9 | 3.32 | 98.2 | 79.8 |
| 실시예 11 | 15Z (533_15%) | 3.34 | 97.9 | 70.8 | 3.34 | 96.9 | 74.8 | 3.34 | 97.8 | 79.1 |
| 비교예 1 | 8YM | 3.27 | 90.0 | 58.5 | 3.27 | 93.7 | 69.4 | 3.27 | 97.7 | 74.9 |
| 비교예 2 | 11YM | 3.29 | 91.0 | 58.3 | 3.29 | 93.6 | 66.6 | 3.29 | 97.2 | 70.7 |
| 비교예 3 | 5Nb (533_5%) | 3.24 | 96.6 | 59.2 | 3.24 | 96.5 | 62.1 | 3.24 | 96.5 | 64.8 |
| 비교예 4 | 7Nb (533_7%) | 3.26 | 95.8 | 61.6 | 3.26 | 96.0 | 65.6 | 3.26 | 96.2 | 65.6 |
| 비교예 5 | 11Nb (533_11%) | 3.30 | 98 | 62.9 | 3.30 | 96.1 | 63.4 | 3.30 | 97.5 | 67.7 |
| 비교예 6 | 15Nb (533_15%) | 3.32 | 98.9 | 63.4 | 3.32 | 97.2 | 65.6 | 3.32 | 98.1 | 72.7 |
| 비교예 7 | 5Ti (533_5%) | 3.24 | 98.1 | 56.4 | 3.24 | 97.5 | 65.8 | 3.24 | 97.4 | 68.7 |
| 비교예 8 | 7Ti (533_7%) | 3.26 | 98.1 | 60.2 | 3.26 | 97.9 | 70.6 | 3.26 | 97.4 | 70.6 |
| 비교예 9 | 11Ti (533_11%) | 3.29 | 97.9 | 57.5 | 3.29 | 97.8 | 69.4 | 3.29 | 98.4 | 70.2 |
| 비교예 10 | 15Ti (533_15%) | 3.31 | 98.0 | 56.0 | 3.31 | 98.0 | 65.6 | 3.31 | 98.0 | 70.0 |
| 비교예 11 | 5Yb (533_5%) | 3.26 | 91.8 | 59.7 | 3.26 | 91.5 | 70.4 | 3.26 | 91.9 | 75.1 |
| 비교예 12 | 7Yb (533_7%) | 3.29 | 91.7 | 58.4 | 3.29 | 91.6 | 72.2 | 3.29 | 92.7 | 76.8 |
| 비교예 13 | 11Yb (533_11%) | 3.34 | 93.7 | 60.7 | 3.34 | 96.3 | 77.2 | 3.34 | 97.2 | 77.3 |
| 비교예 14 | 15Yb (533_15%) | 3.36 | 96.6 | 63.9 | 3.36 | 96.8 | 78.7 | 3.36 | 97.1 | 78.7 |

| | | | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 비교예 15 | 1.89Sc | 3.21 | 97.9 | 65.93 | 3.21 | 97.3 | 63.38 | 3.21 | 97.7 | 73.92 |
| 비교예 16 | 3.84Sc | 3.22 | 98.5 | 67.63 | 3.22 | 97.7 | 65.72 | 3.22 | 98.1 | 72.77 |

[0294]

[0295] (1) 실시 예에 따른 조성물의 밀도 및 열전도도 평가

[0296] 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체 제조용 조성물을 사용하여 1750℃ 내지 1850℃에서 상압 소결하여 제조한 질화규소 소결체(실시 예 1 내지 11)의 밀도 및 열전도도를 평가하였다.

[0297] 상기 표 5에 나타난 바와 같이, 질화규소 소결체를 상압 소결하여 제조함에 있어서, 동일 조성 및 함량을 사용하더라도 소결 온도를 1750℃에서 1850℃로 높일수록 밀도 및 열전도도가 향상됨을 확인할 수 있다.

[0298] 또한, 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를 5:3:3의 중량비로 포함하되, 소결조제를 조성물 전체 중량 대비 5 내지 15 중량%로 달리하여 첨가한 경우(실시 예 1 내지 4), 1750℃ 내지 1850℃의 온도에서 밀도가 93% 이상으로 높게 나타났으며, 열전도도 또한 1750℃에서 69 내지 73W/mK, 1800℃에서 75 내지 84W/mK, 1850℃에서 77 내지 87W/mK로, 매우 높게 나타남을 확인할 수 있으며, 특히 소결조제를 조성물 전체 중량 대비 7 내지 11중량% 포함한 경우, 보다 높은 열전도도를 나타내고 7중량% 포함한 경우 가장 높은 열전도도를 나타냄을 확인할 수 있다.

[0299] 또한, 소결조제를 조성물 전체 중량 대비 7중량%로 포함하고 소결조제로서 $Y_2O_3$; MgO; 및 $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함하되, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 1:3, 1:1, 3:1의 중량비 달리하여 첨가한 경우(실시 예 5 내지 7) 또한, 1750℃ 내지 1850℃의 온도에서 밀도가 96.7% 이상으로 높게 나타났으며, 열전도도 또한 1750℃에서 74 내지 79W/mK, 1800℃에서 78 내지 81W/mK, 1850℃에서 83 내지 91W/mK로, 매우 높게 나타남을 확인할 수 있으며, 특히 $Y_2O_3$; MgO; 및 $Sc_2O_3$와 $ZrO_2$;를 5:3:3의 중량비로 포함하되 $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$를 3:1의 중량비로 포함하고 1850℃에서 상압 소결한 경우 가장 높은 열전도도를 나타냄을 확인할 수 있다.

[0300] 또한, 소결조제로서 $Y_2O_3$, MgO 및 $ZrO_2$를 5:3:3의 중량비로 포함하되, 소결조제를 조성물 전체 중량 대비 5 내지 15 중량%로 달리하여 첨가한 경우(실시 예 8 내지 11), 1750℃ 내지 1850℃의 온도에서 밀도가 95% 이상으로 높게 나타났으며, 열전도도 또한 1750℃에서 67 내지 71W/mK, 1800℃에서 71 내지 75W/mK, 1850℃에서 74 내지 80W/mK로, 매우 높게 나타남을 확인할 수 있으며, 특히 소결조제를 조성물 전체 중량 대비 7 내지 15중량% 포함한 경우, 보다 높은 열전도도를 나타내고 11중량% 포함한 경우 가장 높은 열전도도를 나타냄을 확인할 수 있다.

[0302] 상기 결과로부터 일 실시 예에 따른 질화규소 소결체 제조용 조성물을 이용하여 고열전도도 질화규소 소결체를 제조할 수 있음을 확인할 수 있다.

[0304] (2) 소결조제의 조성에 따른 밀도 및 열전도도 비교

[0305] 질화규소 소결체 제조 시 사용한 소결조제의 조성을 달리하여 제조한 질화규소 소결체의 밀도 및 열전도도를 비교하기 위하여 실시 예 1 내지 4, 실시 예 8 내지 11, 비교 예 1 내지 14에서 제조한 질화규소 소결체의 밀도 및 열전도도를 비교하였다.

[0306] 도 2는 실시 예 1 내지 4, 실시 예 8 내지 11, 비교 예 1 내지 14에서 제조한 질화규소 소결체의 열전도도를 비교한 그래프이다.

[0307] 상기 표 5 및 도 2에 나타난 바와 같이, 소결 온도 및 소결조제를 함량을 동일하게 하더라도, 소결조제의 조성에 따라 열전도도가 크게 달라졌다.

[0308] 보다 구체적으로 $Y_2O_3$ 및 MgO와 함께 $Sc_2O_3$를 사용한 실시 예 1 내지 4의 경우 소결 온도 1750℃에서도 밀도가 93% 내지 98%로 높고, 열전도도 또한 69 내지 73W/mK로 높게 나타났으며, 열전도도의 경우 1800℃에서 75 내지 84W/mK, 1850℃에서 77 내지 87W/mK로 나타나고, $Y_2O_3$ 및 MgO와 함께 $ZrO_2$를 사용한 실시 예 8 내지 11의 경우 소결 온도 1750℃에서도 밀도가 95% 내지 98%로 높고, 열전도도 또한 67 내지 71W/mK로 높게 나타났으며, 열전

도도의 경우 1800℃에서 71 내지 75W/mK, 1850℃에서 74 내지 80W/mK로 나타났다. 이는 1750℃ 내지 1850℃의 온도 범위에서 $Y_2O_3$ 및 MgO만 사용한 경우(비교예 1, 2) 및 $Y_2O_3$ 및 MgO와 함께 $Nb_2O_3$, $TiO_2$ 또는 $Yb_2O_3$를 사용한 경우(비교예 3 내지 14) 대비 현저히 높은 열전도도를 나타내는 것을 확인할 수 있다.

[0309] 상기 결과로부터 일 실시 예에 따라 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제를 포함하되, 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하는 조성물을 이용하여 1750℃ 내지 1850℃로 상압 소결할 경우, 60W/mK이상, 보다 구체적으로는 69 내지 90W/mK의 현저히 우수한 열전도도를 갖는 질화규소 소결체를 제조할 수 있음을 확인할 수 있다.

[0311] (3) 소결조제 함량에 따른 열전도도 비교

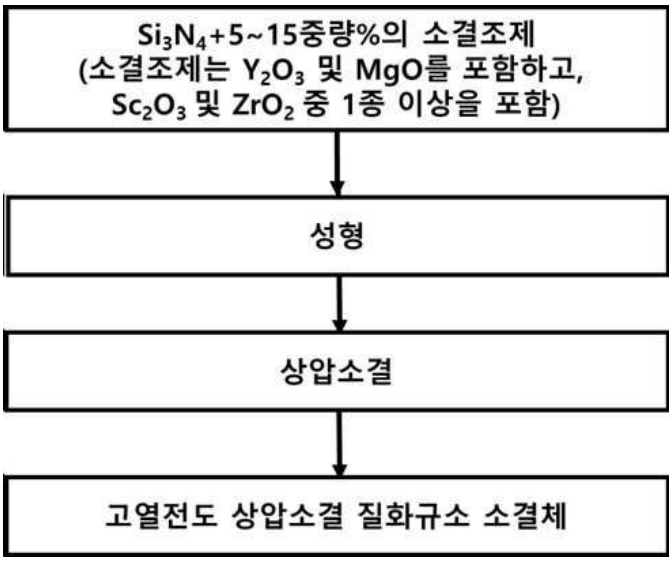
[0312] 질화규소 소결체 제조를 위해 사용하는 소결조제로서, $Y_2O_3$, MgO 및 $Sc_2O_3$를사용하되, 소결조제의 함량을 달리하여 제조한 질화규소 소결체의 열전도도를 비교하기 위하여 실시 예 1 내지 4 및 비교 예 15 및 16에서 제조한 질화규소 소결체의 열전도도를 비교하였다.

[0313] 상기 표 5에 나타난 바와 같이, 1750℃에서 실시 예 1 내지 4는 69 내지 73W/mK로 비교 예 15 및 16(65.93W/mK 및 67.63W/mK)보다 높고, 1800℃에서 75 내지 84W/mK로 비교 예 15 및 16(63.38W/mK 및 65.72W/mK)보다 높고, 1850℃에서 77 내지 87W/mK로, 비교 예 15 및 16(73.92W/mK 및 72.77W/mK)보다 높은 것을 확인할 수 있다.

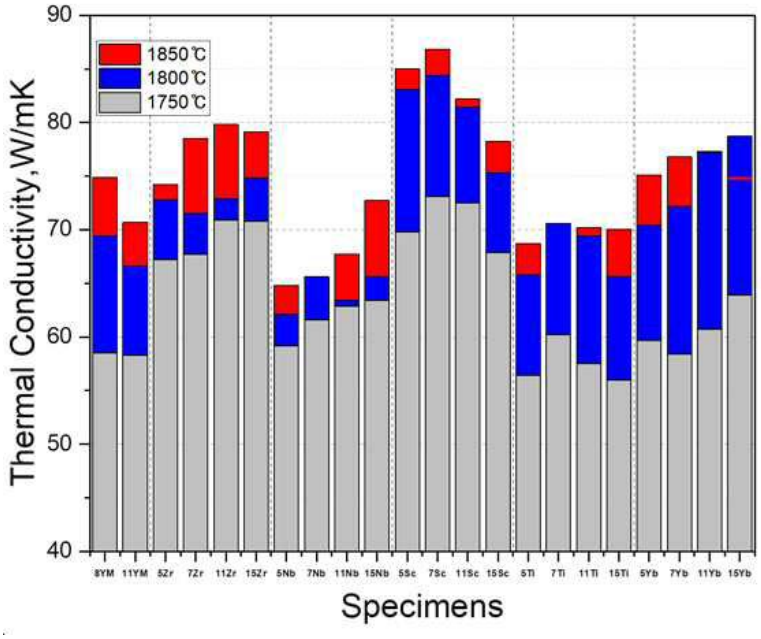
[0314] 상기 결과로부터 일 실시 예에 따라 질화규소($Si_3N_4$) 분말 및 소결조제로서 $Y_2O_3$ 및 MgO를 포함하고, $Sc_2O_3$ 및 $ZrO_2$ 중 1종 이상을 포함하되 소결조제를 조성물 100 중량부에 대하여 5 내지 15 중량부의 함량으로 포함하는 조성물을 이용하여 1750℃ 내지 1850℃로 상압 소결 할 경우, 현저히 우수한 열전도도를 갖는 질화규소 소결체를 제조할 수 있음을 확인할 수 있다.

## 도면

### 도면1



도면2


1850℃
1800℃
1750℃
Thermal Conductivity,W/mK
90
80
70
60
50
40
8YM
11YM
5Zr
7Zr
11Zr
15Zr
5Nb
7Nb
11Nb
15Nb
5Sc
7Sc
11Sc
15Sc
5Ti
7Ti
11Ti
15Ti
5Yb
7Yb
11Yb
15Yb
Specimens