(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2022 년 9 월 22 일 (22.09.2022)

WIPO | PCT

(10) 국제공개번호
WO 2022/197146 A1

(51) 국제특허분류:
C01B 21/068 (2006.01) *C04B 35/584* (2006.01)

(21) 국제출원번호: PCT/KR2022/003813

(22) 국제출원일: 2022 년 3 월 18 일 (18.03.2022)

(25) 출원언어: 한국어

(26) 공개언어: 한국어

(30) 우선권정보:
10-2021-0035999 2021 년 3 월 19 일 (19.03.2021) KR

(71) 출원인: 주식회사 아모텍 (**AMOTECH CO., LTD.**) [KR/KR]; 21629 인천광역시 남동구 남동서로 380, 남동공단 5블록 1롯트, Incheon (KR).

(72) 발명자: 박규환 (**PARK, Kyu Hwan**); 21629 인천광역시 남동구 남동서로 380, 남동공단 5블록 1롯트, Incheon (KR). 정훈 (**CHEONG, Hun**); 21629 인천광역시 남동구 남동서로 380, 남동공단 5블록 1롯트, Incheon (KR).

(74) 대리인: 특허법인 이룸리온 (**ERUUM & LEEON INTELLECTUAL PROPERTY LAW FIRM**); 06575 서울특별시 서초구 사평대로 108, 3층 (반포동), Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:
— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(54) Title: METHOD FOR PREPARING SILICON NITRIDE POWDER FOR MANUFACTURING SUBSTRATE AND SILICON NITRIDE POWDER PREPARED THEREBY

(54) 발명의 명칭: 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법 및 이를 통해 제조된 질화규소 분말

(57) Abstract: Provided is a method for preparing silicon nitride powder for manufacturing a substrate. The method for preparing silicon nitride powder for manufacturing a substrate, according to an embodiment of the present invention, comprises the steps of: preparing mixed raw material powder comprising metallic silicon powder and crystalline phase control powder; preparing the mixed raw material powder into granules having a predetermined particle size; nitrifying the granules at a predetermined temperature ranging from 1,200-1,500 °C while nitrogen gas is applied to the granules at a predetermined pressure; and pulverizing the nitrified granules. According to the method, it is easy to realize powder having an α crystal phase at a desired level, and when this is realized as a substrate, a substrate having compact density can be manufactured.

(57) 요약서: 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법이 제공된다. 본 발명의 일 실시예에 의한 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법은 금속 실리콘 분말 및 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말을 제조하는 단계, 상기 혼합원료분말을 소정의 입경을 가지는 그래뉼로 제조하는 단계; 상기 그래뉼에 소정의 압력으로 질소가스를 가하면서 1200 ~ 1500℃범위 내 소정의 온도로 질화시키는 단계, 및 질화된 그래뉼을 분쇄시키는 단계를 포함한다. 이에 의하면, 목적하는 수준으로 α결정상을 가지도록 분말을 구현하기 용이하고, 이를 통해서 기판으로 구현 시 치밀한 밀도를 갖는 기판을 제조할 수 있다.

WO 2022/197146 A1

명세서

발명의 명칭: 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법 및 이를 통해 제조된 질화규소 분말

기술분야

[1] 본 발명은 질화규소 분말에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법 및 이를 통해 제조된 질화규소 분말에 관한 것이다.

배경기술

[2] 질화규소 소결체는, 내마모성, 내열성, 저열팽창성, 내열 충격성, 및 금속에 대한 내식성이 뛰어나서 종래부터 가스 터빈용 부재, 엔진용 부재, 제강용 기계 부재 등의 각종 구조용 부재에 사용되고 있다. 또한, 높은 절연 특성과 양호한 방열특성으로 인해서 세라믹 기판 등의 전기 부품 소재로써 이용되고 있다.

[3] 이와 같은 질화규소 소결체를 제조하기 위한 질화규소 분말의 합성법으로서는 사염화규소와 암모니아를 반응시켜 이미드 중간체를 만들고, 이것을 열분해하여 질화규소 분말을 얻는 이미드 열분해법이 알려져 있다. 이 방법으로 합성되는 질화규소분말은, 비교적 입도가 고른, 평균 입자 직경이 1㎛ 이하인 분말이며, 또한 높은 α화율을 갖는 α형 질화규소 분말이다. α형 질화규소 분말은 소결 온도를 높게 함으로써 소결 시에 α형으로부터 β형으로의 상전이가 발생하고, 이 결과로서, 예를 들어 상대 밀도가 99%를 초과하는 치밀한 소결체를 얻을 수 있기 때문에, 현재 널리 사용되고 있다. 그러나 이 방법은 원료로 고가의 화합물을 필요로 하고, 제조공정 역시 매우 복잡하여 제조비용과 시간에서 불리함이 있다.

[4] 이에 질화규소 분말을 제조하는 다른 방법으로, 실리콘 고체를 질화하여 응집 덩어리를 얻은 후, 이것을 분쇄하여 질화규소 분말을 만드는 직접 질화법에 대한 연구가 계속되고 있다. 이 방법은 원료 비용이 비교적 저렴하다는 이점이 있다. 그러나 이 방법 역시 수득되는 질화규소 분말의 순도 개선에 과제가 남아있다. 즉, 이 방법으로는 실리콘 고체가 용융되지 않는 낮은 온도에서 표면에서부터 서서히 질화 반응을 진행시키므로 실리콘 고체의 입도를 미리 매우 작게 하는 것이 유리하다고 알려져 있는데, 오히려 원료물질인 실리콘 고체의 입도를 작게 조절하는 분쇄과정에서 불순물이 되는 금속물질 등의 오염물질이 혼입될 우려가 있다. 또한, 오염물질로 오염된 경우 질화 전 오염물질 제거를 위한 산세정을 거쳐야 함에 따른 공수의 증가, 제조시간 연장 및 제조비용 증가의 문제가 있다.

[5] 나아가 질화과정에서 실리콘이 용출되기 쉬운데, 이 경우 기판으로 제조되는 소결 시 실리콘의 용융 및 기화로 인해서 기판의 열전도도 및 기계적 강도가 급격히 감소될 우려가 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

[6] 본 발명은 상기와 같은 점을 감안하여 안출한 것으로, 기판으로 소결 시 열전도도가 개선되면서 우수한 기계적 강도를 가지는 기판을 제조하기에 적합한 질화규소 분말의 제조방법과 이를 이용해 제조된 질화규소 분말을 제공하는데 그 목적이 있다.

과제 해결 수단

[7] 본 발명은 상기와 같은 점을 감안하여 안출한 것으로, 실리콘 분말 및 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말을 제조하는 단계, 상기 혼합원료분말에 유기바인더를 혼합하여 소정의 입경을 가지는 그래뉼로 제조하는 단계; 상기 그래뉼에 소정의 압력으로 질소가스를 가하면서 1200 ~ 1500℃ 범위 내 소정의 온도로 질화시키는 단계; 및 질화된 그래뉼을 분쇄시키는 단계를 포함하는 기판 제조용 질화규소(Si_3N_4) 분말 제조방법을 제공한다.

[8] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 금속 실리콘 분말은 분쇄 중 금속 불순물로 오염되는 것을 최소화하기 위하여 다결정 금속 실리콘 스크랩(scrap) 또는 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩을 건식 분쇄시킨 것일 수 있다.

[9] 또한, 상기 금속 실리콘 분말은 저항율이 1 내지 100 Ω㎝일 수 있다.

[10] 또한, 상기 다결정 금속 실리콘 스크랩 또는 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩은 순도가 99% 이상일 수 있다.

[11] 또한, 상기 금속 실리콘 분말은 평균입경이 0.5 내지 4㎛, 희토류 원소 함유 화합물 분말은 평균입경이 0.1 내지 1㎛, 마그네슘 함유 화합물 분말은 평균입경이 0.1 내지 1㎛일 수 있다.

[12] 또한, 상기 그래뉼은 D50 값이 100㎛ 이하, 보다 바람직하게는 20 ~ 55㎛일 수 있다.

[13] 또한, 상기 희토류 원소 함유 화합물은 산화이트륨이며, 상기 마그네슘 함유 화합물은 산화마그네슘이고, 혼합원료분말에 상기 산화이트륨은 2 내지 5몰%, 상기 산화마그네슘은 2 내지 10몰%로 포함될 수 있다.

[14] 또한, 질화 시 상기 질소가스는 0.1 내지 0.2MPa의 압력으로 가해질 수 있다.

[15] 또한, 질화 시 1000℃ 이상에서부터 소정의 온도까지 0.5 내지 10℃/분의 승온속도로 가열될 수 있다.

[16]

[17] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 제조방법으로 제조되며, 다결정 실리콘이 9중량% 이하인 기판 제조용 질화규소 분말을 제공한다.

[18] 본 발명의 일 실시예에 따르면, α 결정상과 β 결정상의 중량 총합에서 α 결정상의 중량비가 0.7 이상일 수 있다.

[19]

[20] 또한, 본 발명은 금속 실리콘 분말, 및 희토류 원소 함유 화합물과 마그네슘 함유 화합물을 포함하는 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말이

유기바인더와 혼합되어 소정의 입경을 가지는 그래뉼로 형성된 질화규소 분말 제조용 조성물을 제공한다.

[21] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 상기 그래뉼은 D50이 20 ~ 55㎛일 수 있다.

[22]

[23] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 제조방법으로 제조된 질화규소 분말을 포함하는 슬러리를 시트 형상으로 성형 후 소결시켜 제조되며, 열전도도가 70 W/mK 이상이고, 3점 꺽임 강도가 650 MPa 이상인 질화규소 기판을 제공한다.

발명의 효과

[24] 본 발명에 따른 질화규소 분말 제조방법은 목적하는 수준으로 α결정상을 가지도록 분말을 구현하기 용이하고, 이를 통해서 기판으로 구현 시 치밀한 밀도를 갖는 기판을 제조할 수 있다. 또한, 이를 이용해 소결된 기판의 입계 내 균일하게 2차상을 형성시킬 수 있음에 따라서 제조된 기판의 열전도도를 더욱 개선시킬 수 있다. 더불어 본 발명에 따른 질화 규소 분말의 경우 불순물의 함량이 적거나 없고, 특히 용출된 규소가 포함되지 않음에 따라서 열전도도 및 기계적 강도가 우수한 기판의 제조에 적합하다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

[25] 이하, 본 발명의 실시예에 대하여 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다.

[26]

[27] 본 발명의 일 실시예에 따른 질화규소 분말 제조방법은 금속 실리콘 분말, 및 희토류 원소 함유 화합물과 마그네슘 함유 화합물을 포함하는 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말을 제조하는 단계; 상기 혼합원료분말에 용매 및 유기바인더를 혼합하여 슬러리를 형성 시킨 뒤 분무건조 시켜서 소정의 입경을 가지는 그래뉼을 제조하는 단계; 상기 그래뉼에 소정의 압력으로 질소가스를 가하면서 1200 ~ 1500℃ 범위 내 소정의 온도로 질화시키는 단계; 및 질화된 그래뉼을 분쇄시키는 단계를 포함한다.

[28]

[29] 먼저, 질화규소 분말 제조방법은 금속 실리콘 분말, 및 희토류 원소 함유 화합물과 마그네슘 함유 화합물을 포함하는 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말을 제조하는 단계에 대해서 설명한다.

[30] 상기 원료분말로써 주제인 금속 실리콘 분말은 직접 질화법을 통해 질화규소 분말을 제조할 수 있는 금속 실리콘 분말의 경우 제한 없이 사용할 수 있다. 일 예로 상기 금속 실리콘 분말은 다결정 금속 실리콘 스크랩(scrap) 또는 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩일 수 있다. 상기 다결정 금속 실리콘 스크랩은 반도체 공정용 치구나 태양광 패널 제조용으로 사용되는 다결정 금속 실리콘의

부산물일 수 있고, 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩 역시 실리콘 웨이퍼 제조 시 부산물임에 따라서 부산물인 이들 스크랩을 원료분말로써 사용함을 통해 제조단가를 낮출 수 있다.

[31] 또한, 상기 다결정 금속 실리콘 스크랩 또는 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩은 순도가 99% 이상일 수 있으며, 이를 통해 제조된 질화규소 분말을 기판으로 소결 시 열전도도와 기계적 강도를 담보하기에 보다 유리할 수 있다.

[32] 또한, 상기 금속 실리콘 분말은 저항율이 1 내지 100 Ω㎝일 수 있으며, 이를 통해서 본 발명이 목적하는 물성을 갖는 질화규소 분말을 제조하기 보다 유리할 수 있다.

[33] 한편, 원료분말로 사용되는 금속 실리콘 분말은 바람직하게는 다결정 금속 실리콘 스크랩(scrap) 또는 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩을 소정의 크기로 분쇄시킨 것일 수 있다. 이때, 분쇄로 인한 금속 불순물과 같은 오염물질이 원료분말에 혼입되는 것을 방지하기 위하여 상기 분쇄는 건식분쇄 방식을 사용할 수 있고, 구체적으로 디스크밀, 핀밀, 젯밀 등의 건식분쇄 방식을 사용하여 분말화시킬 수 있다. 만일 오염물질이 금속 실리콘 분말에 함유 시 오염물질의 제거를 위한 산세정과 같은 세척공정을 더 거쳐야 하는 제조시간과 비용 증가의 우려가 있다. 이때 분쇄된 상기 금속 실리콘 분말의 평균입경은 0.5 ~ 4㎛, 보다 바람직하게는 2 ~ 4㎛일 수 있으며, 만일 평균입경이 0.5㎛ 미만일 경우 건식분쇄 방식을 통해 구현하기 어려울 수 있고, 미분말화로 인해서 오염물질의 혼입가능성이 커질 우려가 있으며, 시트 캐스팅 시 치밀화가 어려울 수 있다. 또한, 만일 금속 실리콘 분말의 평균입경이 4㎛를 초과 시 질화가 용이하지 않아서 질화되지 않은 부분이 존재할 우려가 있으며, 최종 기판의 치밀화가 어려울 수 있다.

[34]

[35] 한편, 구현하고자 하는 질화규소는 자기확산이 어렵고, 고온에서 열분해될 수 있어서 소결온도가 제한되는 등의 이유로 기판 등으로 소결이 용이하지 않고, 치밀한 소결체를 구현하기 어려우며, 직접 질화법으로 질화규소 분말을 제조 시 결정상 제어가 어려울 수 있어서 이러한 난점을 해결하고, 산소 등의 불순물을 제거하여 질화규소 분말이 소결된 기판의 물성을 개선하기 위하여 금속 실리콘 분말에 결정상 제어 분말을 혼합한 혼합원료분말을 원료분말로써 사용한다. 상기 결정상 제어 분말은 일 예로 희토류 원소 함유 화합물, 알칼리토류 금속 산화물 및 이들의 조합이 사용될 수 있으며, 구체적으로 산화마그네슘(MgO), 산화이트륨(Y_2O_3), 산화가돌리늄(Gd_2O), 산화홀뮴(Ho_2O_3), 산화에르븀(Er_2O_3), 산화이르테븀(Yb_2O_3), 및 산화디스프로슘(Dy_2O_3)으로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상이 사용될 수 있다. 다만 본 발명은 질화규소 분말의 결정상 제어가 보다 용이하게 하기 위하여 산화마그네슘 및 산화이트륨을 결정상 제어 분말에 필수적으로 함유하며, 상기 산화마그네슘 및 산화이트륨은 제조된 질화규소 분말을 이용해 기판을 제조 시 보다 치밀화된 높은 밀도의 기판을

구현하고, 소결 중 잔류 입계 상의 양을 저감시켜서 열전도도를 보다 개선시킬 수 있는 이점이 있다.

[36] 일 예로 혼합원료분말에 상기 산화이트륨은 2 내지 5몰%, 상기 산화마그네슘은 2 내지 10몰%로 포함될 수 있다. 만일 산화이트륨이 2 몰% 미만일 경우 구현된 질화규소 분말을 기판으로 소결 시 치밀화된 기판을 구현하기 어려울 수 있고, 입계 상에 산소를 포획하기 어렵고 이로 인해서 고용 산소량이 많아져 소결된 기판의 열전도도가 낮을 수 있으며, 기계적 강도도 저하될 수 있다. 또한, 만일 산화이트륨이 5몰%를 초과 시 입계 상이 많아져서 구현된 질화규소 분말을 소결한 기판의 열전도도가 저하되고, 파괴인성이 저하되는 우려가 있다. 또한, 산화마그네슘이 2몰% 미만일 경우 구현된 질화규소 분말을 소결한 기판의 열전도도 및 기계적 강도가 모두 낮을 수 있고, 질화 시 실리콘이 용출될 우려가 있으며, 치밀화된 기판을 제조하기 어려울 수 있다. 또한, 만일 산화마그네슘이 10몰%를 초과할 경우 구현된 소결 시 입계에 마그네슘의 잔류량이 많아지고 이로 인해서 구현된 소결 기판의 열전도도가 낮아질 수 있으며, 질화규소 분말의 소결이 용이하지 않고, 파괴인성이 저하되는 문제가 있다.

[37] 또한, 상기 희토류 원소 함유 화합물분말은 평균입경이 0.1 내지 1㎛, 마그네슘 함유 화합물 분말은 평균입경이 0.1 내지 1㎛인 것을 사용할 수 있으며, 이를 통해서 본 발명의 목적을 달성하기에 보다 유리할 수 있다.

[38]

[39] 다음으로 준비된 혼합원료분말에 용매 및 유기바인더를 혼합하여 슬러리를 형성시킨 뒤 분무건조 시켜서 소정의 입경을 가지는 그래뉼을 제조하는 단계를 수행한다.

[40] 혼합원료분말을 곧바로 질화시키지 않고, 소정의 입경을 가지는 그래뉼로 제조한 뒤 그래뉼에 대해서 후술하는 질화공정을 수행하는데, 이를 통해 혼합원료분말의 혼합균일성을 높여 제조되는 질화규소 분말의 결정상을 보다 용이하게 제어할 수 있고, 소결된 기판의 입계 내 $Si_2Y_2O_5$인 2차상을 균일하게 형상시킬 수 있어서 소결된 기판의 열전도도 및 기계적 강도를 보다 개선하면서 균일성을 향상시킬 수 있는 균일한 특성을 가지는 질화규소 분말을 제조할 수 있다.

[41] 상기 그래뉼은 D50 값이 100㎛ 이하, 보다 바람직하게는 20 내지 100㎛, 보다 더 바람직하게는 20 ~ 55㎛, 더 바람직하게는 20 ~ 40㎛일 수 있는데, 만일 D50이 100㎛를 초과 시 그래뉼 내부로 질소 가스의 유입이 원활하지 못해 질화가 완전히 일어나지 못하고, 질화되지 못한 실리콘이 용융되어 그래뉼 밖으로 용출될 수 있으며, 이와 같은 질화규소분말을 기판으로 제조할 경우 질화규소 분말 제조 시 용출되었던 실리콘이 다시 기판 밖으로 용출될 수 있는 우려가 있다. 여기서 D50 값이란 레이저 회절 산란법을 사용하여 측정한 50% 체적 기준에서의 값을 의미한다.

[42]

[43] 한편, 상기 그래뉼은 건식분무법을 통해 수득될 수 있고, 건식분무법을 수행할 수 있는 공지의 조건, 장치를 이용해 수득될 수 있어서 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다. 또한, 혼합원료 분말은 용매와 유기바인더와 혼합된 슬러리로 구현된 뒤 건식분무 되는데, 상기 용매와 유기바인더는 세라믹분말을 그래뉼로 구현하기 위해서 슬리러화 시 사용되는 용매와 유기바인더의 경우 제한 없이 사용할 수 있다. 일예로 상기 용매는 에탄올, 메탄올, 이소프로판올, 증류수 및 아세톤 중 선택되는 1종 이상을 포함하는 것이 바람직하다. 또한, 상기 유기바인더는 폴리비닐부티랄(PVB)계 바인더를 사용하는 것이 바람직하다. 한편, 그래뉼 제조 시 유기바인더가 함유되나 미량으로 함유 시 후술하는 질화공정 이전에 탈지공정을 별도로 더 거치지 않을 수 있다.

[44]

[45] 다음으로 수득된 그래뉼에 소정의 압력으로 질소가스를 가하면서 1200 ~ 1500℃ 범위 내 소정의 온도로 질화처리하는 단계를 수행한다.

[46] 이때, 질화처리 시 상기 질소가스는 0.1 내지 0.2MPa의 압력으로 가해질 수 있으며, 보다 바람직하게는 0.15내지 0.17MPa의 압력으로 가해질 수 있다. 만일 질소 가스 압력이 0.1MPa 미만일 경우 질화가 완전히 일어나지 않을 수 있다. 또한, 질소가스 압력이 0.2MPa를 초과 시 질화 과정에서 실리콘이 용출되는 현상이 발생된다. 또한, 질화처리 시 1000℃ 이상에서부터 소정의 온도까지 0.5 내지 10℃/분의 승온속도로 가열될 수 있는데, 만일 1000℃ 이상에서부터 소정의 온도까지 승온속도가 0.5℃/분 미만일 경우 소결 시간이 과도히 연장될 수 있다. 또한, 승온 속도가 10℃/분을 초과 시 실리콘이 용출되어 완전히 질화규소로 질화된 분말을 제조하기 어려울 수 있다.

[47] 또한, 질화처리 시 온도는 1200 ~ 1500℃ 범위 내에서 소정의 온도로 선택될 수 있는데, 만일 상기 소정의 온도가 1200℃ 미만일 경우 질화가 균일하게 일어나지 않을 수 있다. 또한, 상기 소정의 온도가 1500℃를 초과 시 β 결정상이 빠르게 형성됨에 따라서 이와 같은 질화규소 분말을 이용해 기판을 제조 시 치밀화가 어려울 수 있다. 또한, 상기 소정의 온도에서 30분 ~ 5시간 동안 질화가 수행될 수 있으며, 이를 통해 본 발명의 목적을 달성하기 보다 유리할 수 있다.

[48]

[49] 다음으로 질화처리된 그래뉼을 분쇄시키는 단계를 수행한다.

[50] 질화처리된 그래뉼을 질화규소 분말로 제조하는 단계로써, 분쇄 시 오염물질의 혼입을 방지하도록 바람직하게는 건식방법에 의할 수 있으며, 일 예로 에어 제트밀을 통해서 수행할 수 있다.

[51]

[52] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 제조방법으로 제조되며, 용융된 실리콘 유래의 다결정 실리콘이 8중량% 이하인 기판 제조용 질화규소 분말을 포함하며, 바람직하게는 6중량% 이하, 보다 바람직하게는 4중량% 이하, 더욱

바람직하게는 0중량%임에 따라서 기계적 강도 및 열전도도가 향상된 기판을 제조하기에 적합할 수 있다.

[53] 본 발명의 일 실시예에 따르면, α 결정상과 β 결정상의 중량 총합에서 α 결정상의 중량비가 0.7 이상일 수 있는데, 만일 α 결정상과 β 결정상의 중량 총합에서 α 결정상의 중량비가 0.7 미만일 경우 질화규소 분말을 통해 소결된 기판의 치밀성을 높이기 어려울 수 있고, 열전도도와 기계적 강도 개선이 어려우며 특히 기계적 강도 개선이 어려울 수 있다.

[54] 또한, 상기 질화규소 분말은 이를 통해 구현되는 기판 소결체의 입계 상에 $Si_2Y_2O_5$인 2차상을 보다 균일하게 형성시킬 수 있고, 이를 통해서 기판의 열전도도 개선에 상승된 효과를 발현할 수 있다.

[55] 또한, 상기 질화규소 분말은 평균입경이 2 ~ 4㎛일 수 있으며, 이를 통해 기계적 강도 및 열전도도가 개선된 기판을 구현하기에 보다 유리할 수 있다.

[56]

[57] 또한, 본 발명은 본 발명에 따른 제조방법으로 제조된 질화규소 분말을 포함하는 슬러리를 시트 형상으로 성형 후 소결시켜 제조되며, 열전도도가 70 W/mK 이상, 바람직하게는 80 W/mK 이상, 보다 더 바람직하게는 90 W/mK 이상이고, 3점 꺽임강도가 650 MPa 이상, 바람직하게는 680 MPa 이상, 보다 바람직하게는 700 MPa 이상인 질화규소 기판을 포함한다. 또한, 질화규소 기판의 균일성이 우수해 질화규소 소결체를 10등분 한 후 각각각에 대해 측정한 열전전도의 표준편차가 5 W/mK 이하, 보다 바람직하게는 3W/mK이하 일 수 있고, 3점 꺽임강도의 표준편차는 25MPa 이하, 보다 바람직하게는 20MPa 이하일 수 있다. 또한, 질화규소 기판은 소결밀도가 3.0g/㎤ 이상일 수 있고, 보다 바람직하게는 3.2g/㎤ 이상일 수 있다.

[58] 상기 질화규소 기판은 질화규소 분말을 포함하는 슬러리를 시트 형상으로 성형 후 소결시키는 공지의 방법으로 제조될 수 있으며, 일예로 상기 슬러리를 테이프 캐스팅법을 통해서 시트 형상으로 성형할 수 있다.

[59] 또한, 상기 슬러리는 용매 및 유기 바인더를 더 함유할 수 있다. 상기 용매는 유기바인더를 용해시키고 질화규소 분말을 분산시켜 점도를 조절하기 위하여 유기용매를 사용할 수 있으며, 상기 유기용매로서 유기 바인더를 녹일 수 있는 물질이 사용 가능하며, 일 예로 터피놀(Terpineol), 디하이드로 터피놀(Dihydro terpineol; DHT), 디하이드로 터피놀 아세테이트(Dihydro terpineol acetate; DHTA), 부틸카비톨아세테이트(Butyl Carbitol Acetate; BCA), 에틸렌글리콜, 에틸렌, 이소부틸알콜, 메틸에틸케톤, 부틸카비톨, 텍사놀(texanol)(2,2,4-트리메틸-1,3-펜탄디올모노이소부티레이트), 에틸벤젠, 이소프로필벤젠, 시클로헥사논, 시클로펜타논, 디메틸설폭사이드, 디에틸프탈레이트, 톨루엔, 이들의 혼합물 등을 사용할 수 있다. 이때 상기 용매는 질화규소 분말 100중량부에 대하여 50 ~ 100 중량부 혼합하는 것이 바람직하다. 상기 용매의 함량이 50중량부 미만이면 슬러리의 점도가 높아

테이프캐스팅을 수행하는데 어려움이 있고 코팅 두께를 조절하는데도 어려움이 있을 수 있으며, 상기 용매의 함량이 100중량부를 초과하면 슬러리의 점도가 너무 묽게 되어 건조하는데 시간이 오래 걸리고 코팅 두께를 조절하는데도 어려움이 있을 수 있다.

[60] 또한, 상기 유기바인더는 상기 질화규소 분말 100중량부에 대하여 5 ~ 20 중량부 혼합하는 것이 바람직하다. 상기 유기바인더로는 에틸셀룰로오스(ethyl cellulose), 메틸셀룰로오스, 니트로셀룰로오스, 카르복시셀룰로오스 등의 셀룰로오스 유도체, 또는 폴리비닐알콜, 아크릴산에스테르, 메타크릴산에스테르, 폴리비닐부티랄 등의 고분자 수지일 수 있으며, 테이프캐스팅 방법(Tape casting method)으로 시트 형태의 성형체를 형성하는 것을 고려할 때, 상기 유기바인더로 폴리비닐부티랄을 사용할 수 있다.

[61] 한편, 상기 슬러리에는 분산제, 가소제 등 시트를 성형하기 위한 슬러리에 함유되는 공지의 물질을 더 포함할 수 있으며 본 발명은 이에 대해 특별히 한정하지 않는다. 성형된 시트는 1800 ~ 1900℃의 온도에서 0.5 ~ 1.0MPa 소결될 수 있으며, 이를 통해서 고품위의 질화규소 기판을 구현하기에 보다 유리할 수 있다.

발명의 실시를 위한 형태

[62] 하기의 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하기로 하지만, 하기 실시예가 본 발명의 범위를 제한하는 것은 아니며, 이는 본 발명의 이해를 돕기 위한 것으로 해석되어야 할 것이다.

[63]

[64] <실시예1>

[65] 반도체 공정용 치구 유래의 다결정 실리콘 스크랩(순도 99.99%, 저항율 1Ω㎝)을 젯밀을 이용하여 건식분쇄시켜서 평균입경이 4㎛인 금속 실리콘 분말을 준비했다. 여기에 평균입경이 0.5㎛인 산화이트륨 2몰%, 평균입경이 0.5㎛인 산화마그네슘 5몰%를 혼합해 혼합원료분말을 준비했다. 준비된 혼합원료분말 100 중량부를 용매인 에탄올 80 중량부, 유기바인더로 폴리비닐부티랄 10 중량부와 혼합해 그래뉼 제조용 슬러리를 제조했고, 이를 열분무 장치를 이용해 분무건조시켜서 D50 값이 20㎛인 그래뉼을 제조했다. 제조된 그래뉼을 질소가스 압력 0.15MPa에서 열처리했고, 구체적으로 1000℃까지는 승온속도를 5℃/분, 1000℃에서 1400℃까지는 승온속도를 0.5℃/분로 한 뒤, 1400℃에서 2시간 동안 열처리해 질화처리된 그래뉼을 수득했고, 이를 에어 제트밀을 통해 분쇄시켜 평균입경이 2㎛인 하기 표 1과 같은 질화규소 분말을 수득했다.

[66] 이후, 수득된 질화규소 분말 100 중량부에 대해 폴리비닐부티랄 수지 5중량부, 용매로써 톨루엔과 에탄올을 5:5로 혼합한 용제 50 중량부를 볼밀에서 혼합, 용해, 분산시켰다. 이후 제조된 슬러리를 통상적인 테이프 캐스팅(Tape casting)

방법을 통해 시트형상으로 제조한 후 170㎛ 시트형상으로 제조한 후 제조된 시트 4장을 교차적층한 후 질소 분위기 하에서 1900℃에서 4시간 열처리하여 표 1과 같은 질화규소 기판을 제조했다.

[67]

[68] <비교예1>

[69] 실시예1과 동일하게 실시하여 제조하되, 혼합원료분말을 그래뉼로 구현하지 않고, 질화규소분말로 수득 후 이를 통해 하기 표 1과 같은 질화규소 기판을 제조했다.

[70]

[71] <실험예1>

[72] 실시예1 및 비교예1에서 제조된 질화규소 분말 또는 질화규소 기판에 대해서 하기의 물성을 평가해 그 결과를 하기 표 1에 나타내었다.

[73] 1. D50

[74] 레이저 회절 산란법을 사용하여 측정한 50% 체적 기준값을 D50값으로 하였다.

[75]

[76] 2. 소결밀도

[77] 제조된 기판에 대해서 아르키메데스 방법으로 소결 밀도를 측정했다.

[78]

[79] 3. 열전도도 및 균일성

[80] 제조된 기판을 실시예 및 비교예별 총 10개의 시편으로 준비한 뒤 이에 대해서 열전도도를 KS L 1604 (ISO 18755, ASTM E 1461) 방법으로 측정한 후 측정된 값의 평균값 및 표준편차를 계산했으며, 표준편차가 0에 가까울수록 열전도도가 균일함을 의미한다.

[81]

[82] 4. 3점 꺽임강도 및 균일성

[83] 제조된 기판을 실시예 및 비교예별 총 10개의 시편으로 준비한 뒤 제조된 기판에 대해서 3점 꺽임강도(S)는 KS L 1590 (ISO 14704) 방법으로 측정한 후 아래의 식에 대입하여 계산된 값의 평균값 및 표준편차를 계산했다. 3점 꺽임강도 표준편차가 0에 가까울수록 3점 꺽임강도가 균일함을 의미한다.

[84]

[85] [식]

[86] $S = 3PL/(2bd^2)$

[87] 식에서 P는 파괴하중, L은 지점 간의 거리, b는 보의 폭, d는 보의 두께이다.

[88] [표1]

			실시예1	비교예1
혼합원료분말	MgO(몰%)		5	5
	Y_2O_3(몰%)		2	2
그래뉼 D50(㎛)			20	-
질화조건	질소가스압력(MPa)		0.15	0.15
	1000℃부터 질화온도까지 승온속도(℃/분)		0.5	0.5
	질화온도(℃)		1400	1400
질화규소 기판	소결 밀도(g/㎤)		3.21	3.21
	열전도도(W/mK)	평균값	94	81
		표준편차	3	8
	3점 꺽임강도(MPa)	평균값	680	550
		표준편차	20	50

[89]

[90] 표 1을 통해 확인할 수 있듯이 실시예1에 따른 질화규소 기판은 비교예1에 따른 질화규소 기판에 대비해 열전도도 및 3점 꺽임강도가 우수하면서도 균일한 특성을 발현하는 것을 알 수 있는데, 이는 질화규소기판의 제조에 사용되는 질화규소 분말의 그래뉼화 및 이로 인한 질화균일성 증대에 기인한 결과로 예상된다.

[91]

[92] <실시예 2 ~ 9>

[93] 실시예1과 동일하게 실시하여 제조하되, 혼합원료분말에서 성분의 함량이나 그래뉼의 D50 값, 질화조건 등을 하기 표 2 또는 표 3과 같이 변경해 질화규소 분말을 수득했고, 이를 통해서 하기 표 2 또는 표 3과 같은 질화규소 분말 및 질화규소 기판을 제조했다.

[94]

[95] <실험예2>

[96] 실시예1 ~ 실시예9에서 제조된 질화규소 분말 또는 질화규소 기판에 대해서 하기의 물성을 평가해 그 결과를 하기 표 2 또는 표 3에 나타내었다.

[97] 1. 결정상

[98] 질화규소 분말에 대해서 XRD 측정을 통해서 α 및 β결정상을 정량화했으며, 하기의 식을 통해서 α 결정상의 중량비율을 계산했다.

[99] α 결정상의 중량비 = α/(α+β)

[100]

[101] 2. D50

[102] 레이저 회절 산란법을 사용하여 측정한 50% 체적 기준값을 D50값으로 하였다.

[103]

[104] 3. 소결밀도

[105] 제조된 기판에 대해서 아르키메데스 방법으로 소결 밀도를 측정했다.

[106]

[107] 4. 열전도도

[108] 각 실시예 별로 제조된 기판 10개에 대해서 열전도도는 KS L 1604 (ISO 18755, ASTM E 1461) 방법으로 측정해 측정된 값의 평균값을 계산했다.

[109]

[110] 5. 3점 꺽임강도

[111] 각 실시예별로 제조된 기판 10개에 대해서 3점 꺽임강도(S)는 KS L 1590 (ISO 14704) 방법으로 측정하여 아래 식으로 계산하였고, 계산된 값의 평균값을 계산했다.

[112] [식]

[113] $S = 3PL/(2bd^2)$

[114] 식에서 P는 파괴하중, L은 지점 간의 거리, b는 보의 폭, d는 보의 두께이다.

[115] [표2]

		실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6
혼합원료분말	MgO(몰%)	5	5	5	5	5	5
	Y_2O_3(몰%)	2	2	2	2	2	2
그래뉼 D50(㎛)		20	30	40	60	80	100
질화조건	질소가스압력(MPa)	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15
	1000℃부터 질화온도까지 승온속도(℃/분)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	질화온도(℃)	1400	1400	1400	1400	1400	1400
질화규소분말	α결정상 중량비 [α/(α+β)]	0.97	0.92	0.87	0.85	0.78	0.70
	용출 Si(중량%)	0	0	0	4	8	9
질화규소 기판	소결 밀도(g/㎤)	3.21	3.20	3.17	3.01	2.92	2.94
	열전도도(W/mK)	94	82	77	62	58	53
	3점 꺽임강도(MPa)	680	750	650	460	420	380

[116]

[117] [표3]

		실시예7	실시예8	실시예9
혼합원료 분말	MgO(몰%)	7	10	15
	Y_2O_3(몰%)	2	2	2
그래뉼 D50(㎛)		32	32	32
질화조건	질소가스압력(MPa)	0.15	0.15	0.15
	1000℃부터 질화온도까지 승온속도(℃/분)	0.5	0.5	0.5
	질화온도(℃)	1400	1400	1400
질화규소 분말	α결정상 중량비 [α/(α+β)]	0.79	0.92	0.95
	용출 Si(중량%)	0	0	0
질화규소 기판	소결 밀도(g/㎤)	3.21	3.21	3.20
	열전도도(W/mK)	121	87	82
	3점 꺽임강도(MPa)	750	720	680

[118] 표 2 및 표 3을 통해 확인할 수 있듯이,

[119] 실시예들은 혼합원료분말을 적절한 크기의 그래뉼로 제조된 후 질화됨에 따라서 수득된 질화규소 분말을 이용해 제조된 기판의 열전도도 및 3점 꺽임 강도를 개선하는데 매우 적합한 분말임을 확인할 수 있다. 다만, 실시예 6과 같이 그래뉼의 크기가 큰 경우 질화규소 분말에서 용출되는 실리콘의 함량이 높을 수 있고, 이 경우 제조된 기판의 기계적 강도와 열전도도를 개선하기에 부족할 수 있음을 알 수 있다.

[120]

[121] 이상에서 본 발명의 일 실시예에 대하여 설명하였으나, 본 발명의 사상은 본 명세서에 제시되는 실시 예에 제한되지 아니하며, 본 발명의 사상을 이해하는 당업자는 동일한 사상의 범위 내에서, 구성요소의 부가, 변경, 삭제, 추가 등에 의해서 다른 실시 예를 용이하게 제안할 수 있을 것이나, 이 또한 본 발명의 사상범위 내에 든다고 할 것이다.

청구범위

[청구항 1] 금속 실리콘 분말, 및 희토류 원소 함유 화합물과 마그네슘 함유 화합물을 포함하는 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말을 제조하는 단계;
상기 혼합원료분말을 유기바인더와 혼합하여 소정의 입경을 가지는 그래뉼로 제조하는 단계;
상기 그래뉼에 소정의 압력으로 질소가스를 가하면서 1200 ~ 1500℃범위 내 소정의 온도로 질화시키는 단계; 및
질화된 그래뉼을 분쇄시키는 단계;를 포함하는 기판 제조용 질화규소(Si_3N_4) 분말 제조방법.

[청구항 2] 제1항에 있어서,
상기 금속 실리콘 분말은 분쇄 중 금속 불순물로 오염되는 것을 최소화하기 위하여 다결정 금속 실리콘 스크랩(scrap) 또는 단결정 실리콘 웨이퍼 스크랩을 건식 분쇄시킨 것인 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 3] 제1항에 있어서,
상기 금속 실리콘 분말은 저항율이 1 내지 100 Ω㎝인 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 4] 제2항에 있어서,
상기 다결정 금속 실리콘 스크랩 또는 단결정 금속 실리콘 웨이퍼 스크랩은 순도가 99% 이상인 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 5] 제1항에 있어서,
상기 금속 실리콘 분말은 평균입경이 0.5 내지 4㎛, 희토류 원소 함유 화합물 분말은 평균입경이 0.1 내지 1㎛, 마그네슘 함유 화합물 분말은 평균입경이 0.1 내지 1㎛인 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 6] 제1항에 있어서,
상기 그래뉼은 D50 값이 20 ~ 55㎛ 인 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 7] 제1항에 있어서,
상기 희토류 원소 함유 화합물은 산화이트륨이며, 상기 마그네슘 함유 화합물은 산화마그네슘이고,
혼합원료분말에 상기 산화이트륨은 2 내지 5몰%, 상기 산화마그네슘은 2 내지 10몰%로 포함되는 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 8] 제1항에 있어서,
질화 시 1000℃ 이상에서부터 소정의 온도까지 0.5 내지 10℃/분의 승온속도로 가열되며, 상기 질소가스는 0.1 내지 0.2MPa의 압력으로 가해지는 기판 제조용 질화규소 분말 제조방법.

[청구항 9] 제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 따른 제조방법으로 제조되며, 다결정

실리콘이 9중량% 이하인 기판 제조용 질화규소 분말.

[청구항 10] 제9항에 있어서,
α 결정상과 β 결정상의 중량 총합에서 α 결정상의 중량비가 0.7 이상인 기판 제조용 질화규소 분말.

[청구항 11] 금속 실리콘 분말, 및 희토류 원소 함유 화합물과 마그네슘 함유 화합물을 포함하는 결정상 제어 분말을 포함하는 혼합원료분말이 유기바인더와 혼합되어 소정의 입경을 가지는 그래뉼로 형성된 질화규소 분말 제조용 조성물.

[청구항 12] 제11항에 있어서,
상기 그래뉼은 D50이 20 ~ 55㎛인 질화규소 분말 제조용 조성물.

[청구항 13] 제9항에 따른 질화규소 분말을 포함하는 슬러리를 시트 형상으로 성형 후 소결시켜 제조되는 질화규소 기판.

[청구항 14] 제13항에 있어서,
열전도도가 70W/mK 이상이고, 3점 꺽임 강도가 650 MPa 이상인 질화규소 기판.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/KR2022/003813

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B 21/068(2006.01)i; **C04B 35/584**(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C01B 21/068(2006.01); B01J 6/00(2006.01); B32B 18/00(2006.01); C01B 21/06(2006.01); C04B 35/584(2006.01); C04B 35/591(2006.01); C04B 35/622(2006.01); C04B 35/64(2006.01)

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean utility models and applications for utility models: IPC as above
Japanese utility models and applications for utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & keywords: 질화규소(silicon nitride), 희토류(rare earth elements), 마그네슘(magnesium), 그래뉼(granule), 기판(substrate)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	KR 10-2011-0050845 A (KOREA INSTITUTE OF MACHINERY & MATERIALS) 17 May 2011 (2011-05-17) See paragraphs [0034]-[0035], [0037], [0039], [0042], [0046], [0048] and [0050].	1-14
Y	KR 10-2017-0135105 A (KOREA INSTITUTE OF CERAMIC ENGINEERING AND TECHNOLOGY) 08 December 2017 (2017-12-08) See paragraph [0009]; experimental example 1; and claims 1 and 11.	1-14
A	KR 10-2016-0111005 A (JAPAN FINE CERAMICS CO., LTD.) 23 September 2016 (2016-09-23) See entire document.	1-14
A	KR 10-2017-0060970 A (AGENCY FOR DEFENSE DEVELOPMENT) 02 June 2017 (2017-06-02) See entire document.	1-14
A	US 4117095 A (KOMEYA, Katsutoshi et al.) 26 September 1978 (1978-09-26) See entire document.	1-14

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"D" document cited by the applicant in the international application
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
22 June 2022	**22 June 2022**

Name and mailing address of the ISA/KR	Authorized officer
Korean Intellectual Property Office **Government Complex-Daejeon Building 4, 189 Cheongsa-ro, Seo-gu, Daejeon 35208**	
Facsimile No. **+82-42-481-8578**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/KR2022/003813

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
KR 10-2011-0050845 A	17 May 2011	KR 10-1140352 B1	03 May 2012
		KR 10-1140353 B1	03 May 2012
		KR 10-1155549 B1	19 June 2012
		KR 10-1212638 B1	14 December 2012
		KR 10-2011-0057691 A	01 June 2011
		KR 10-2011-0083009 A	20 July 2011
		US 2011-0111205 A1	12 May 2011
		US 2014-0035206 A1	06 February 2014
		US 8808614 B2	19 August 2014
KR 10-2017-0135105 A	08 December 2017	None	
KR 10-2016-0111005 A	23 September 2016	CN 106132908 A	16 November 2016
		CN 106132908 B	25 August 2017
		JP 2015-199657 A	12 November 2015
		JP 5836522 B2	24 December 2015
		KR 10-1751531 B1	27 June 2017
		US 2016-0362592 A1	15 December 2016
		US 9938444 B2	10 April 2018
		WO 2015-152292 A1	08 October 2015
KR 10-2017-0060970 A	02 June 2017	KR 10-2017-0109515 A	29 September 2017
US 4117095 A	26 September 1978	JP 52-038500 A	25 March 1977
		JP 54-013240 B	29 May 1979

국 제 조 사 보 고 서

국제출원번호
PCT/KR2022/003813

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C01B 21/068(2006.01)i; **C04B 35/584**(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C01B 21/068(2006.01); B01J 6/00(2006.01); B32B 18/00(2006.01); C01B 21/06(2006.01); C04B 35/584(2006.01); C04B 35/591(2006.01); C04B 35/622(2006.01); C04B 35/64(2006.01)

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC
일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 질화규소(silicon nitride), 희토류(rare earth elements), 마그네슘(magnesium), 그래뉼(granule), 기판(substrate)

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	KR 10-2011-0050845 A (한국기계연구원) 2011.05.17 단락 [0034]-[0035], [0037], [0039], [0042], [0046], [0048], [0050] 참조.	1-14
Y	KR 10-2017-0135105 A (한국세라믹기술원) 2017.12.08 단락 [0009]; 실험예 1; 청구항 1, 11 참조.	1-14
A	KR 10-2016-0111005 A (니혼 파인 세라믹스 가부시키가이샤) 2016.09.23 전체 문헌 참조.	1-14
A	KR 10-2017-0060970 A (국방과학연구소) 2017.06.02 전체 문헌 참조.	1-14
A	US 4117095 A (KOMEYA, KATSUTOSHI 등) 1978.09.26 전체 문헌 참조.	1-14

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☑ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

"A" 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

"D" 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌

"E" 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

"L" 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

"O" 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

"P" 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

"T" 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

"X" 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

"Y" 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

"&" 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

국제조사의 실제 완료일	국제조사보고서 발송일
2022년06월22일(22.06.2022)	**2022년06월22일(22.06.2022)**

ISA/KR의 명칭 및 우편주소

대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 **+82-42-481-8578**

심사관

허주형

전화번호 **+82-42-481-5373**

국 제 조 사 보 고 서
대응특허에 관한 정보

국제출원번호
PCT/KR2022/003813

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2011-0050845 A	2011/05/17	KR 10-1140352 B1	2012/05/03
		KR 10-1140353 B1	2012/05/03
		KR 10-1155549 B1	2012/06/19
		KR 10-1212638 B1	2012/12/14
		KR 10-2011-0057691 A	2011/06/01
		KR 10-2011-0083009 A	2011/07/20
		US 2011-0111205 A1	2011/05/12
		US 2014-0035206 A1	2014/02/06
		US 8808614 B2	2014/08/19
KR 10-2017-0135105 A	2017/12/08	없음	
KR 10-2016-0111005 A	2016/09/23	CN 106132908 A	2016/11/16
		CN 106132908 B	2017/08/25
		JP 2015-199657 A	2015/11/12
		JP 5836522 B2	2015/12/24
		KR 10-1751531 B1	2017/06/27
		US 2016-0362592 A1	2016/12/15
		US 9938444 B2	2018/04/10
		WO 2015-152292 A1	2015/10/08
KR 10-2017-0060970 A	2017/06/02	KR 10-2017-0109515 A	2017/09/29
US 4117095 A	1978/09/26	JP 52-038500 A	1977/03/25
		JP 54-013240 B	1979/05/29