(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0130215
(43) 공개일자 2020년11월18일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09C 1/02 (2006.01) *C09C 3/04* (2006.01)
C09C 3/06 (2006.01) *C09J 11/04* (2006.01)
(52) CPC특허분류
C09C 1/028 (2013.01)
C09C 3/041 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2020-0148927(분할)
(22) 출원일자 2020년11월09일
심사청구일자 없음
(62) 원출원 특허 10-2019-0166846
원출원일자 2019년12월13일
심사청구일자 2019년12월13일
(30) 우선권주장
1020180161252 2018년12월13일 대한민국(KR)

(71) 출원인
한국기계연구원
대전광역시 유성구 가정북로 156 (장동)
(72) 발명자
안철우
경상남도 창원시 성산구 삼정자로 79 유니온빌리지
최종진
부산광역시 해운대구 마린시티3로 51 101동 3001호 (우동,더샵아델리스아파트)
한병동
경상남도 창원시 성산구 삼정자로 79(성주동, 유니온빌리지)
(74) 대리인
특허법인(유한) 대아

전체 청구항 수 : 총 19 항

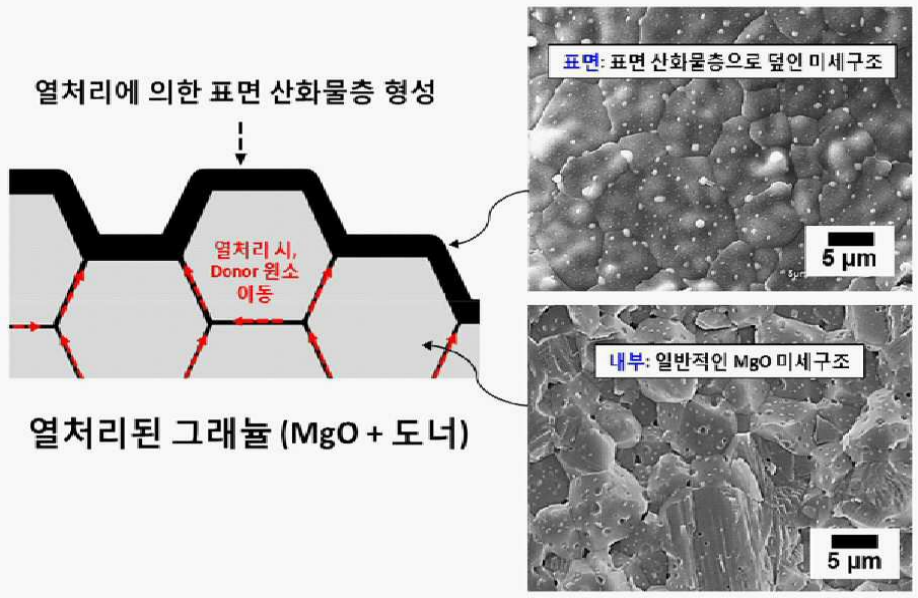
(54) 발명의 명칭 **마그네시아 및 그 제조 방법, 및 고열전도성 마그네시아 조성물, 이를 이용한 마그네시아 세라믹스**

(57) 요 약

본 발명은 분말로부터 다양한 형상과 크기의 그래뉼을 제조할 수 있으며, 도너의 첨가에 의해 열처리 후 내흡습성이 있는 표면 산화물층이 형성됨에 따라, MgO의 낮은 내흡습성이 개선되는 마그네시아 및 그 제조 방법에 대하여 개시한다.

(뒷면에 계속)

대 표 도 - 도1



그리고, 본 발명은 MgO 에 도너를 첨가하여 소결온도를 낮추고, 열확산 계수를 향상시킬 수 있는 고열전도성 마그네시아 조성물 및 이를 이용한 마그네시아 세라믹스에 대하여 개시한다.

본 발명에 따른 마그네시아의 제조 방법은 (a) MgO 분말에 도너와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계; (b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; (c) 상기 건조된 혼합물로부터 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성하는 단계; 및 (d) 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고, 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하여 상기 MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층을 형성하는 것을 특징으로 한다.

(52) CPC특허분류
C09C 3/043 (2013.01)
C09C 3/063 (2013.01)
C09J 11/04 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1711101700
과제번호	PNK6330
부처명	과학기술정보통신부
과제관리(전문)기관명	재료연구소
연구사업명	재료연구소연구운영비지원(R&D)(주요사업비)
연구과제명	도너 도핑이 MgO의 소결온도와 열전도도에 미치는 영향 연구(2/2)
기 여 율	1/1
과제수행기관명	한국기계연구원 부설 재료연구소
연구기간	2019.01.01 ~ 2019.12.31

명 세 서

청구범위

청구항 1

(a) MgO 분말로부터 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성하는 단계; 및

(b) 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고,

상기 도너는 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 포함하며,

상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하여 상기 MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층을 형성하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 2

(a) MgO 분말로부터 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성하는 단계; 및

(b) 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고,

상기 도너는 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 포함하며,

상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하여 상기 MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 치밀도가 다른 표면 산화물층을 형성하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 3

(a) $Mg(OH)_2$ 분말로부터 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 형성하는 단계; 및

(b) 상기 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고,

상기 도너는 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 포함하며,

상기 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하여, MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층을 형성하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 4

(a) $Mg(OH)_2$ 분말로부터 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 형성하는 단계; 및

(b) 상기 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고,

상기 도너는 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 포함하며,

상기 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하여, MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 치밀도가 다른 표면 산화물층을 형성하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 5

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 (a) 단계에서, MgO 분말과 도너의 전체 100 wt.%에 대하여, 상기 도너를 0.01~10.0 wt.% 포함하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 6

제3항 또는 제4항에 있어서,

상기 (a) 단계에서, $Mg(OH)_2$ 분말과 도너의 전체 100 wt.%에 대하여, 상기 도너를 0.01~10.0 wt.% 포함하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 7

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 (b) 단계에서, 800~1800℃에서 열처리하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 8

제2항 또는 제4항에 있어서,

상기 표면 산화물층의 치밀도는 MgO 그래뉼 내부의 치밀도 보다 높은 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 9

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 표면 산화물층 내부의 도너의 함량은 MgO 그래뉼 내부의 도너의 함량보다 높은 표면 산화물층이 형성되는 마그네시아(MgO)의 제조 방법.

청구항 10

MgO 그래뉼; 및

상기 MgO 그래뉼 표면에 형성된 표면 산화물층;을 포함하고,

상기 표면 산화물층의 치밀도와 상기 MgO 그래뉼 내부의 치밀도가 서로 다른 마그네시아(MgO).

청구항 11

제10항에 있어서,

상기 표면 산화물층의 치밀도는 상기 MgO 그래뉼 내부의 치밀도 보다 높은 마그네시아(MgO).

청구항 12

제10항에 있어서,

상기 표면 산화물층 내부의 도너는 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 포함하는 마그네시아(MgO).

청구항 13

제10항에 있어서,

상기 표면 산화물층 내부의 도너의 함량은 MgO 그래뉼 내부의 도너의 함량보다 높은 마그네시아(MgO).

청구항 14

제10항에 있어서,

상기 마그네시아는 TiO_2와 Nb_2O_5를 포함하고,

하기 수학식(6)을 만족하는 마그네시아(MgO).

수학식(6) MgO + x wt.% TiO_2 + y wt.% Nb_2O_5 ≤ 100 wt.%

(상기 수학식(6)에서, x, y는 $0 < x, y \leq 2.0$이고 잔부는 MgO이다.)

청구항 15

제10항에 있어서,

상기 마그네시아(MgO)는 열계면 소재용 세라믹 필러인 마그네시아(MgO).

청구항 16

제10항에 있어서,

상기 마그네시아는 TiO_2, Nb_2O_5, ZrO_2, 또는 Al_2O_3를 포함하고,

하기 수학식(1), 수학식(2), 수학식(3), 또는 수학식(4)를 만족하는 마그네시아(MgO).

수학식(1) MgO + x wt.% TiO_2 ≤ 100 wt.%

수학식(2) MgO + y wt.% Nb_2O_5 ≤ 100 wt.%

수학식(3) MgO + z wt.% ZrO_2 ≤ 100 wt.%

수학식(4) MgO + w wt.% Al_2O_3 ≤ 100 wt.%

(상기 수학식(1) 내지 (4)에서, x, y, z, w는 $0.1 \leq x, y, z, w \leq 2.0$이고, 잔부는 MgO이다.)

청구항 17

제10항에 있어서,

상기 마그네시아는 TiO_2, Nb_2O_5 및 Al_2O_3를 포함하고,

하기 수학식(7)을 만족하는 마그네시아(MgO).

수학식(7) MgO + 0.3wt.% TiO_2 + 0.3wt.% Nb_2O_5 + x wt.% Al_2O_3 ≤ 100 wt.%

(상기 수학식(7)에서, x 는 0.1 ≤ x ≤ 2.0이고, 잔부는 MgO이다.)

청구항 18

제10항에 있어서,

상기 수학식(2)에서 y는 0.1 ≤ y ≤ 1.0을 만족하는 마그네시아(MgO).

청구항 19

제10항에 있어서,

상기 마그네시아는 TiO_2, Nb_2O_5 및 ZrO_2 를 포함하고,

하기 수학식(5)를 만족하는 마그네시아(MgO).

수학식(5) MgO + 0.3wt.% TiO_2 + 0.3wt.% Nb_2O_5 + z wt.% ZrO_2 ≤ 100 wt.%

(상기 수학식(5)에서, z는 0.1 ≤ z ≤ 0.2이고, 잔부는 MgO이다.)

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 MgO 분말에 도너를 첨가하여 열처리하는 중에 MgO 그래뉼 표면에 그래뉼 내부와는 상이한 MgO-도너를 포함하는 표면 산화물층이 형성되면서, 내흡습성이 개선되어 열계면 소재에 사용될 수 있는 세라믹 필러용 마그네시아 및 그 제조 방법에 관한 것이다. 또한 본 발명은 MgO 에 도너를 첨가하여 소결온도를 낮추고, 열확산 계수를 향상시킬 수 있는 고열전도성 마그네시아 조성물 및 이를 이용한 마그네시아 세라믹스에 관한 것이다.

[0002]

배 경 기 술

[0003] 고출력 LED나 파워 디바이스 등의 고전력이 소모되고, 열이 많이 발생하는 부품 제작에 있어서, 부품의 신뢰성 및 장수명 보장을 위해 방열 패키지가 사용되고 있다.

[0004] 일반적으로, 방열 패키지는 고열전도성 절연기판, 금속히트싱크 (Metal Heat Sink)로 이루어져 있다. 고열전도성 절연기판과 금속히트싱크 사이에는 방열접착제인 열계면 소재(TIM: Thermal Interface Material)가 사용된다.

[0005] 열계면 소재는 고열전도성 절연기판과 금속히트싱크를 서로 밀착시키는 접착제 역할을 하거나 방열 부품으로 단독 사용된다. 이러한 열계면 소재는 폴리머와 고열전도성 금속 또는 세라믹 필러 소재의 복합체로 이루어진다.

[0006] 열계면 소재는 폴리머에 Al_2O_3 필러를 포함시켜 주로 사용되고 있다.

[0007] 그러나 Al_2O_3 필러 소재는 열전도도가 20-30 W/mK으로 다소 낮아서 개선될 필요가 있다.

[0008] 한편, MgO는 원료 가격이 Al_2O_3와 동등 수준이며, 열전도도가 30-60 W/mK으로 Al_2O_3 필러 소재에 비해 열전도성이 우수하다. 뿐만 아니라, MgO는 10^{14} Ohm·cm 이상의 비저항을 보여 전기 절연성이 우수하다. 이에 따라, Al_2O_3 필러 대신 MgO 필러가 사용되면, Al_2O_3 기반 열계면 소재의 열전도도를 개선할 수 있어서 TIM용 필러로서 유용하다.

[0009] 하지만, MgO는 흡습성이 비교적 높기 때문에 수분 흡수에 의해 열전도도가 저하된다. 그리고 수분 흡수에 의해 MgO 표면에 발생하는 $Mg(OH)_2$는 고분자와의 복합을 어렵게 하여 TIM으로 제조가 어려울 뿐만 아니라, 체적 팽창으로 인해 폴리머 소재와 분리될 가능성이 높은 점 등의 문제가 발생하기 쉽다. 이러한 점이 MgO를 열전도성 세

라믹 필러로의 실용화에 장애 요소가 되고 있다. 이에 따라, MgO를 TIM용 열전도성 세라믹 필러로 개발하기 위해서는 내흡습성을 개선시킬 수 있는 기술 개발이 선행되어야 한다.

[0010] 한편, MgO는 알루미나(Al_2O_3)에 비해 열전도도가 30-60 W/mK으로 높은 장점이 있다.

[0011] 그러나, 알루미나(Al_2O_3)가 약 1500~1600℃에서 소결되는 반면, 마그네시아(MgO)는 1700℃ 이상 고온에서 소결되는 단점이 있어 마그네시아(MgO) 소결 조건의 개선이 필요하다. 그 동안 마그네시아(MgO)의 저온 소결 시도는 있었으나, 열전도도를 유지하면서 소결 온도를 낮추는 방열 세라믹 소재 연구는 없었다.

[0012] 따라서, 마그네시아(MgO)의 고열전도 특성은 유지하면서 알루미나(Al_2O_3)의 소결온도인 1500℃ 보다 낮은 온도에서 소결이 가능하도록 하여 가격 경쟁력이 있는 저가의 고열전도성 산화물 신소재의 개발 연구가 필요하다.

[0013]

선행기술문헌

특허문헌

[0014] (특허문헌 0001) KR 공개특허공보 10-2016-0014590호(2016.02.11.공개)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0015] 본 발명의 목적은 내흡습성이 우수하여 열계면 소재용 세라믹 필러에 적용할 수 있는 마그네시아 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

[0016] 본 발명의 다른 목적은 저온 소결(<1500℃)과 고열전도성 특성을 동시에 확보할 수 있는 마그네시아(MgO) 조성물 및 마그네시아(MgO) 세라믹스를 제공하는 것이다.

[0017]

[0018] 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.

[0019]

과제의 해결 수단

[0020] 본 발명은 (a) MgO 분말에 도너와 유기 용매를 사용하여 혼합물을 형성하는 단계; (b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; (c) 상기 건조된 혼합물로부터 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성하는 단계; 및 (d) 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고, 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하여 상기 MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층을 형성하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법을 제공한다.

[0021]

[0022] 또한 본 발명은 (a) $Mg(OH)_2$ 분말에 도너와 증류수를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계; (b) 상기 혼합물을 건조시키는 단계; (c) 상기 건조된 혼합물로부터 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 형성하는 단계; 및 (d) 상기 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하는 단계;를 포함하고, 상기 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하여, MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층을 형성하는 마그네시아(MgO)의 제조 방법을 제공한다.

[0023]

[0024] 또한 본 발명은 MgO 그래뉼; 및 상기 MgO 그래뉼 표면에 형성된 표면 산화물층;을 포함하고, 상기 표면 산화물

층의 조성과 상기 MgO 그래뉼 내부의 조성이 서로 다른 마그네시아(MgO)를 제공한다.

[0025]

[0026] 또한 본 발명은 MgO 기지 내에 TiO_2, Nb_2O_5, ZrO_2, 또는 Al_2O_3를 포함하고, 하기 수학식(1), 수학식(2), 수학식(3), 또는 수학식(4)를 만족하는 마그네시아(MgO) 조성물을 제공한다.

[0027] 수학식(1) MgO + x wt.% TiO_2,

[0028] 수학식(2) MgO + y wt.% Nb_2O_5

[0029] 수학식(3) MgO + z wt.% ZrO_2

[0030] 수학식(4) MgO + w wt.% Al_2O_3

[0031] (상기 수학식(1) 내지 (4)에서, x,y,z,w는 $0<x,y,z,w\leq10.0$이다.)

[0032]

발명의 효과

[0033] 본 발명에 따른 마그네시아의 제조 방법은 열처리 중 MgO 그래뉼 표면에 그래뉼 내부와는 다른 "MgO와 도너 소재"를 포함하는 표면 산화물층이 형성됨에 따라 MgO의 낮은 내흡습성을 개선시키는 효과가 있다. 이러한 마그네시아는 열계면 소재용 세라믹 필러에 활용될 수 있다.

[0034] 또한 본 발명은 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 포함하는 세라믹 조성물을 마그네시아(MgO)에 첨가함으로써, 열전도도가 높은 마그네시아(MgO)를 1500℃ 보다 낮은 온도에서 소결이 가능하도록 하면서, 열확산 계수를 향상시킨 마그네시아(MgO) 소재를 저가의 방열 세라믹 소재로 활용할 수 있다.

[0035]

[0036] 상술한 효과와 더불어 본 발명의 구체적인 효과는 이하 발명을 실시하기 위한 구체적인 사항을 설명하면서 함께 기술한다.

[0037]

도면의 간단한 설명

[0038] 도 1은 본 발명의 MgO 그래뉼 제조 시, 열처리에 의한 표면 산화물층 형성 개념도, 및 표면과 내부의 미세구조 사진이다.

도 2는 본 발명의 제조 방법에 따라 제조된 MgO 그래뉼의 형상 및 크기를 보여주는 미세구조 사진과, 열처리(1400℃, 2 h) 전, 후의 표면 미세구조 사진이다.

도 3은 MgO 원료 분말과, MgO 분말에 도너를 첨가하여 열처리(1400℃, 2 h)된 MgO 그래뉼의 물 반응에 대한 저항성 차이를 보여주는 사진이다.

도 4는 1400℃에서 2 h 동안 열처리한 MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + 0.2 wt.% SiO_2 시편(왼쪽)과 MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 시편(오른쪽)의 표면 산화물층 두께를 확인할 수 있는 파단면 미세구조 사진이다.

도 5는 1400℃에서 2 h 동안 열처리한 MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + 0.2 wt.% SiO_2 시편에서 MgO-도너를 포함하는 표면 산화물층의 형성을 확인할 수 있는 Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS) 분석 결과 및 미세구조 사진이다.

도 6은 마그네시아(MgO)에 TiO_2 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 7은 마그네시아(MgO)에 Nb_2O_5 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 8은 마그네시아(MgO)에 TiO_2(또는 Nb_2O_5) 조성물을 미량 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화 및 밀도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 9는 마그네시아(MgO)에 0.3 wt.% TiO_2 + 미량의 Nb_2O_5 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화 및 밀도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 10은 마그네시아(MgO)에 ZrO_2 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 11은 마그네시아(MgO)에 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + ZrO_2 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 12는 마그네시아(MgO)에 Al_2O_3 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 13은 마그네시아(MgO)에 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + 미량의 Al_2O_3 조성물을 첨가하여 소결한 시편의 열확산도 변화 및 밀도 변화를 나타내는 그래프이다.

도 14는 마그네시아(MgO)에 2.0 wt.% TiO_2 조성물을 첨가한 시편과 마그네시아(MgO)에 2.0 wt.% ZrO_2 조성물을 첨가한 시편을 각각 1400℃에서 2시간 동안 소결한 후 그 파단면을 전자현미경으로 관찰한 미세구조의 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0039] 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.

[0040] 이하에서는, 본 발명의 몇몇 실시예에 따른 마그네시아 및 그 제조 방법, 및 고열전도성 마그네시아 조성물, 이를 이용한 마그네시아 세라믹스를 설명하도록 한다.

[0041]

[0042] 본 발명의 마그네시아의 제조 방법은 MgO 분말에 도너와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계, 상기 혼합물을 건조시키는 단계, 상기 건조된 혼합물로부터 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성하는 단계, 및 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하는 단계를 포함한다.

[0043] 그리고, 상기 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리함으로써, 상기 MgO 그래뉼 표면에 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층을 형성하는 것을 특징으로 한다.

[0044] 본 발명에서 도너는 MgO에 비해 금속 원자가가 높은 금속 산화물로서, 3가 이상의 원자가를 갖는 산화물을 의미한다.

[0045]

[0046] 한편, 본 발명의 마그네시아의 제조 방법은 상기 MgO 분말 대신 $Mg(OH)_2$가 사용될 수 있다. $Mg(OH)_2$가 사용되는 경우, 열처리 후 소결체 및 그래뉼의 수축률(linear shrinkage)이 20~40%로 나타난다. 이 수축률은 MgO를 사용한 경우에 수축률이 10~30%인 것에 비해 높은 수축률 차이가 있다.

[0047] MgO 분말 대신 $Mg(OH)_2$ 분말을 출발원료로 하여 마그네시아를 제조하는 경우, 유기용매 대신 증류수를 첨가하는 것이 바람직하다. 후술할 MgO 분말을 이용한 마그네시아 제조 방법의 조건에서 출발원료 $Mg(OH)_2$와 증류수를 사용하는 것을 제외하고는 동일한 조건으로 마그네시아를 제조할 수 있다.

[0048]

[0049] 하기 제조 방법은 MgO 분말을 이용하여 마그네시아를 제조하는 방법으로 설명하기로 한다.

[0050] MgO 분말에 도너와 유기 용매를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계에서, 도너를 유기 용매에 용해 및 분산시켜 마련된 용액에 MgO 분말을 혼합하여 혼합물을 형성할 수 있다.

[0051] 상기 MgO 분말과 도너의 전체 100 wt.%에, 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 포함하는 도너 0.01~10.0 wt.%를 소량 첨가한다.

[0052] 도너의 첨가량이 이 범위를 벗어나는 경우, 열계면 소재용 세라믹 필러로서 마그네시아의 내흡습성 및 열전도 특성을 확보하기 어려울 수 있다.

[0053] MgO 분말에 도너와 유기용매를 첨가한 후, 볼 밀링을 통해 혼합 및 분쇄하여 혼합물을 형성한다.

[0054] 혼합물을 형성하는 단계에서, 0.5~72시간 동안 분쇄가 이루어질 수 있다.

[0055] 분쇄 시간이 0.5시간 미만으로 너무 짧을 경우, MgO와 도너 첨가제의 혼합 및 분쇄 효과가 부족할 수 있다. 반대로, 72시간을 초과할 경우 분쇄시간이 너무 길어지면서 공정이 비효율적일 수 있다.

[0056] 상기 유기용매는 2-프로판올, 무수 알코올 등이 사용될 수 있으며, 증류수도 사용될 수 있다. 증류수가 사용될 경우, $Mg(OH)_2$의 형성으로 인해, 20~40%의 수축률을 나타낸다. 이 수축률은 2-프로판올 또는 무수 알코올을 사용할 경우에 열처리 후 소결체 및 그래뉼의 수축률이 10~30%인 것에 비해, 높은 수축률 차이가 있다.

[0057]

[0058] 상기 혼합물을 건조시키는 단계는 유기 용매를 제거하기 위해 수행된다. 유기 용매는 25±5℃에서의 자연 건조 또는 25℃ 이상에서의 건조를 통해 제거될 수 있다.

[0059]

[0060] 상기 건조된 혼합물로부터 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성하는 단계에서, 다양한 방법을 이용하여 MgO 분말로부터 MgO 그래뉼을 형성할 수 있다.

[0061] 예를 들어, 원기둥 형태의 용기를 사용하여 10~500 rpm 회전 속도로 회전시킴으로써, MgO 분말로부터 다양한 크기의 MgO 그래뉼을 형성함과 동시에, 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 형성할 수 있다. 여기서 분말과 그래뉼의 차이를 비교하면, 분말의 입경보다 그래뉼의 입경이 더 크다.

[0062] 도너가 첨가된 MgO 그래뉼도 상기 MgO 그래뉼 형성 방법과 같은 방법으로 제조될 수 있으며, 도너가 첨가된 MgO 그래뉼은 MgO 그래뉼의 표면에 도너가 분산되어 존재하는 형태로 제조될 수도 있다.

[0063]

[0064] 도너가 첨가된 MgO 그래뉼을 열처리하는 단계는 800~1800℃에서 수행될 수 있다.

[0065] 열처리 중 도너의 일부가 그래뉼 표면으로 이동되어, MgO와 도너를 포함하는 표면 산화물층을 형성한다. 이에 따라, 열처리하는 단계에서 MgO 그래뉼 표면에 MgO-도너를 포함하는 표면 산화물층이 형성된다.

[0066] 상기 열처리 온도는 800~1800℃에서 수행되는 것이 바람직하며, 이 범위를 벗어나는 경우 MgO 그래뉼 표면에 표면 보호층으로서 산화물층이 제대로 형성되지 않을 수 있다.

[0067]

[0068] 전술한 제조 방법과 마찬가지로, $Mg(OH)_2$ 분말을 출발원료로 하여 마그네시아를 제조하는 경우, $Mg(OH)_2$ 분말에 도너와 증류수를 첨가하여 혼합물을 형성하는 단계, 상기 혼합물을 건조시키는 단계, 상기 건조된 혼합물로부터 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 형성하는 단계, 및 도너가 첨가된 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 열처리하는 단계를 포함하여 마그네시아를 제조할 수 있다. 도너 및 열처리에 대한 사항은 전술한 바와 같다.

[0069]

[0070] 도 1은 본 발명의 MgO 그래뉼 제조 시, 열처리에 의한 표면 산화물 형성 개념도, 및 표면과 내부의 미세구조 사진이다.

[0071] 도 1에 도시한 바와 같이, 열처리 공정에서 일부의 도너들이 입계를 따라 이동하여 그래뉼 표면에 모이게 된다. 그 결과 그래뉼 표면에는 MgO 그래뉼 내부와 조성이 다른 표면 산화물층이 형성된다.

[0072] 본 발명에서 MgO의 낮은 내흡습성은 표면 산화물층의 형성으로 인해 개선될 수 있다.

[0073]

[0074] 이처럼, 본 발명에서는 MgO 분말 원료 또는 $Mg(OH)_2$ 분말 원료를 이용하여 도너가 첨가된 MgO 그래뉼 또는 $Mg(OH)_2$ 그래뉼을 형성한 후, 열처리하여 마그네시아를 제조하는 방법을 통해, MgO 그래뉼 표면에 보호층과 같은 MgO와 도너를 포함하는 표면 산화물층이 형성되어 내흡습성과 우수한 열 특성을 확보할 수 있다.

[0075] 예를 들어, Mg과 Mg 이외의 금속 원소가 하나 이상 포함된 Mg_2TiO_4, $Zr_{0.904}Mg_{0.096}O_{1.904}$ 등의 금속 산화물을 포함하는 표면 산화물층은 흡습성 문제에서 자유로운 점을 활용하여 MgO의 내흡습성을 개선하는 효과가 있다.

[0076]

[0077] 본 발명의 MgO 분말 원료 또는 $Mg(OH)_2$ 분말 원료로부터 제조되는 마그네시아는 MgO 그래뉼, 및 상기 MgO 그래뉼 표면에 형성된 표면 산화물층을 포함한다. 여기서, 마그네시아는 표면 산화물층의 조성과 상기 MgO 그래뉼 내부의 조성이 서로 다르며, 표면 산화물층은 MgO와 도너를 포함하는 것을 특징으로 한다.

[0078] 상기 도너는 MgO에 비해 금속 원자가가 높은 금속 산화물로서, 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 포함한다.

[0079] 상기 마그네시아 전체 100 wt.%에 대하여, 상기 도너(금속 산화물) 소재는 0.01~10.0 wt.%로 포함될 수 있고, 바람직하게는 0.01~2.0 wt.%로 포함될 수 있다.

[0080] 구체적으로, 상기 마그네시아(MgO)는 TiO_2와 Nb_2O_5를 포함하고, 하기 수학식(6)을 만족한다.

[0081] 수학식(6) MgO + x wt.% TiO_2 + y wt.% Nb_2O_5

[0082] 상기 수학식(6)에서, x,y는 $0<x,y\leq 2.0$이다.

[0083]

[0084] 도 2는 본 발명의 제조 방법에 따라 제조된 MgO 그래뉼의 형상 및 크기를 보여주는 미세구조 사진과, 열처리(1400℃, 2 h) 전, 후의 표면 미세구조 사진이다.

[0085] 도 2를 참조하면, 제조 조건(rpm)에 따라 다양한 크기의 MgO 그래뉼을 제조할 수 있다. 열처리 전의 MgO 그래뉼에 비해, 열처리 후 MgO 그래뉼의 표면 산화물층은 치밀한 미세구조를 보인다.

[0086]

[0087] 도 3은 MgO 원료 분말과, MgO 분말에 도너를 첨가하여 열처리(1400℃, 2 h)된 MgO 그래뉼의 물 반응에 대한 저항성 차이를 보여주는 사진이다.

[0088] MgO 원료 분말은 도너가 첨가되지 않은 분말로, 온도 85°C, 습도 85% 환경에서 72시간 유지시킨 경우, 분말의 표면에서 $Mg(OH)_2$가 관찰되었다.

[0089] 반면, 본 발명의 제조 방법에 따라 도너가 첨가된 MgO 분말로 제조하여 1400℃에서 열처리한 그래뉼은 온도 85°C, 습도 85% 환경에서 72시간 유지시킨 경우, 그래뉼의 표면에서 $Mg(OH)_2$ 가 관찰되지 않았다.

[0090] 이러한 결과는 본 발명처럼 MgO 분말 원료에 도너를 첨가하여 MgO 그래뉼을 형성한 후 열처리한 경우, 물과 반응하지 않아 내흡습성이 개선되었음을 보여준다.

[0091]

[0092] 도 4는 1400℃에서 2 h 동안 열처리한 MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + 0.2 wt.% SiO_2 시편(왼쪽)과 MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 시편(오른쪽)의 표면 산화물층 두께를 확인할 수 있는 파단면 미세구조 사진이다.

[0093] 도너가 첨가된 MgO는 열처리 후에 시편(그래뉼) 내부와 구분되는 표면 산화물층을 형성하였다. MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + 0.2 wt.% SiO_2 시편에서는 MgO-도너를 포함하는 0.1㎛ 내지 3㎛ 두께의 표면 산화물층

이 형성된 것을 확인할 수 있다. MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 시편을 관찰한 TEM 이미지에서는 0.1㎛ 보다 얇은 표면 산화물층도 관찰된다.

[0094]

[0095] 도 5는 1400℃에서 2 h 동안 열처리한 MgO + 0.3 wt.% TiO_2 + 0.3 wt.% Nb_2O_5 + 0.2 wt.% SiO_2 시편에서 MgO-도너를 포함하는 표면 산화물층의 형성을 확인할 수 있는 Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS) 분석 결과 및 미세구조 사진이다.

[0096] 도너가 첨가된 MgO는 열처리 시, 내부와 다른 상의 표면 산화물층이 형성되었다.

[0097] 소결 시편 표면보다 시편 내부의 MgO 함량이 높다는 것이 확인되었다. 이는 소결체의 표면에 MgO-도너를 포함하는 표면 산화물층이 형성됨을 의미한다.

[0098] 그리고, 표면 산화물층 내부의 도너의 함량이 MgO 그래뉼 내부의 도너의 함량보다 농도가 더 높았다. 이는 마그네시아 100 wt.% 에 대하여, 도너는 2.0 wt.% 이하로 첨가되었으며, 표면 산화물층 내의 도너의 농도는 전체(그래뉼과 표면 산화물)의 도너의 평균 농도보다 높고, 그로 인해 그래뉼 내의 도너 보다 표면 산화물층 내의 도너의 함량이 더 높음을 보여준다. 그 차이는, 표면 산화물층 내 도너의 함량이 그래뉼 내부의 도너의 함량보다 적어도 2배 이상, 바람직하게는 3배 이상, 보다 바람직하게는 10배 이상 높은 농도로 측정되었다.

[0099]

[0100] 본 발명에 따른 고열전도성 마그네시아(MgO) 조성물은 MgO 기지 내에 TiO_2, Nb_2O_5, ZrO_2, 또는 Al_2O_3를 포함하고, 하기 수학식(1), 수학식(2), 수학식(3), 또는 수학식(4)를 만족한다.

[0101] 수학식(1) MgO + x wt.% TiO_2,

[0102] 수학식(2) MgO + y wt.% Nb_2O_5

[0103] 수학식(3) MgO + z wt.% ZrO_2

[0104] 수학식(4) MgO + w wt.% Al_2O_3

[0105] 상기 수학식(1) 내지 (4)에서, x,y,z,w는 $0<x,y,z,w\leq10.0$이다.

[0106]

[0107] 바람직하게는, 상기 수학식(1)에서 x는 $0<x\leq10.0$ 이고, 상기 수학식(2)에서 y는 $0<y\leq5.0$ 이며, 상기 수학식(3)에서 z는 $0<z\leq4.0$ 이며, 상기 수학식(4)에서 w는 $0<w\leq0.8$ 을 만족할 수 있다. 보다 바람직하게는, 상기 수학식(2)에서 y는 $0<y\leq1.0$의 범위를 만족할 수 있다.

[0108]

[0109] 도 6과 표 1을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 이산화티탄(TiO_2)은 0 wt.% 초과 내지 10.0 wt.% 이하가 첨가되면 본 발명에 따른 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도가 증가됨을 알 수 있다.

[0110] 특히, 도 6, 도 8 및 표 1을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 이산화티탄(TiO_2)은 0 wt.% 초과 내지 2.0 wt.% 이하를 첨가하여 1400℃에서 소결한 경우, 1700℃에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도와 유사하거나 보다 우수한 것을 알 수 있다.

[0111] 또한, 도 6, 도 8 및 표 1을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 이산화티탄(TiO_2)은 0wt.% 초과 내지 10.0wt.% 이하를 첨가하여 1300℃ 내지 1400℃에서 소결한 경우, 모든 조성에서 96% 이상의 높은 상대밀도를 보여, 동 소결 온도에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 상대 밀도인 80-90%에 비해 월등히 개선됨을 확인할 수 있다.

[0112] 뿐만 아니라 1300℃ 내지 1400℃의 저온에서 소결된 상기 마그네시아(MgO)에 0wt.% 초과 내지 10.0wt.% 이하의 이산화티탄(TiO_2)이 첨가된 조성의 열확산도가 동 소결 온도에서 소결된 마그네시아(MgO)의 열확산도에 비해 모두 높게 나타남을 확인할 수 있다.

[0113]

[0114] 도 7 및 도 8을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 오산화니오비움(Nb_2O_5)은 0wt.% 초과 내지 5.0wt.% 이하가 첨가되면 본 발명에 따른 마그네시아(MgO) 세라믹스를 1300℃ 내지 1400℃에서 소결한 경우에도 1700℃에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도와 유사하거나 보다 우수한 것을 알 수 있다.

[0115] 특히, 도 7 및 도 8을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 오산화니오비움(Nb_2O_5)은 1.0wt.% 이하가 첨가되는 경우, 1400℃에서 소결한 시편은 1700℃에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도 보다 우수한 것을 알 수 있다.

[0116]

[0117] 도 9에서는 0.3 wt.% TiO_2를 고정하고, 추가로 Nb_2O_5 를 더 첨가하면, 1.0 wt.%까지 열전도 특성의 향상이 관찰됨을 확인할 수 있다.

[0118]

[0119] 도 10을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 산화지르코늄(ZrO_2)은 0wt.% 초과 내지 4.0wt.% 이하가 첨가되면 본 발명에 따른 마그네시아(MgO) 세라믹스를 1400℃에서 소결한 경우에도 1700℃에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도와 유사한 것을 알 수 있다.

[0120]

[0121] 도 11을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 이산화티탄(TiO_2), 상기 오산화니오비움(Nb_2O_5) 및 상기 산화지르코늄(ZrO_2)은 함께 첨가되어도 1300℃ 내지 1400℃의 소결한 시편의 열확산도가 1700℃에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도와 유사하거나 우수한 것을 알 수 있다.

[0122] 특히, 도 11을 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 이산화티탄(TiO_2) 0.3wt.%, 상기 오산화니오비움(Nb_2O_5) 0.3wt.% 및 상기 산화지르코늄(ZrO_2)은 0wt.% 초과 내지 0.05wt.% 이하가 첨가되는 경우, 본 발명에 따른 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도가 1700℃에서 소결된 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도보다 현저히 높음을 알 수 있다.

[0123]

[0124] 도 12를 참조하면, 상기 마그네시아(MgO)에 도너로서 상기 알루미나(Al_2O_3) 0wt.% 초과 내지 0.8wt.% 이하가 첨가되면 본 발명에 따른 마그네시아(MgO) 세라믹스의 열확산도가 증가됨을 알 수 있다.

[0125]

[0126] 도 13에서는 0.3 wt.% TiO_2와 0.3 wt.% Nb_2O_5를 고정하고, 추가로 Al_2O_3 를 더 첨가하여도 열전도 특성이 크게 저하되지 않고 유사한 열전도 특성 경향을 보였다.

[0127]

[0128] 본 발명에 따른 고열전도성 마그네시아(MgO) 조성물은 MgO 기지 내에 TiO_2, Nb_2O_5 및 ZrO_2 를 포함하고, 하기 수학식(5)를 만족한다.

[0129] 수학식(5) MgO + 0.3wt.% TiO_2 + 0.3wt.% Nb_2O_5 + z wt.% ZrO_2

[0130] 상기 수학식(5)에서, z는 $0<z\leq0.05$이다.

[0131]

[0132] 전술한 바와 같이, 도 6 내지 도 13, 표 1을 참조하면, MgO에 도너로서 작용할 수 있는 3가 이상의 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 이상의 금속 산화물 조성물을 소량 첨가한 시편은, MgO에 도너가 첨가되지 않은 시편에 비해 열 특성이 향상되었음을 보여준다.

[0133]

[0134] 본 발명의 마그네시아 세라믹스를 제조하는 방법은 마그네시아(MgO)에 도너를 첨가 및 혼합하여, 고열전도성 마그네시아(MgO) 조성물 중 어느 하나의 조성물을 제조하는 단계, 상기 조성물을 건조하는 단계, 및 상기 조성물을 소결하는 단계를 포함한다. 상기 소결은 1200℃ 내지 1500℃에서 수행될 수 있다.

[0135] 마그네시아(MgO)의 저온 소결에 있어서, 도너(Donor)로 작용할 수 있는 한 가지 이상의 물질을 첨가함으로써, 소결성 향상을 통한 저온 소결을 달성할 수 있다.

[0136] 상기 도너는 TiO_2, Nb_2O_5, ZrO_2, Ga_2O_3, Mn_2O_3, Fe_2O_3, SnO_2, MnO_2, SiO_2, V_2O_5, Ta_2O_4, Sb_2O_5, Y_2O_3, Eu_2O_3, Er_2O_3 및 Al_2O_3 중 1종 이상을 포함한다.

[0137] 본 발명의 마그네시아(MgO) 세라믹스는 마그네시아(MgO)에 도너로 이산화티탄(TiO_2), 오산화니오비움(Nb_2O_5), 산화지르코늄(ZrO_2) 및/또는 알루미나(Al_2O_3)을 적당량 첨가하여 볼 밀에서 2-프로판올을 용매로 혼합하고, 이후 이들을 분쇄하여 건조시킨다. 건조된 혼합분말을 지름이 15㎜인 원형의 금속몰드에서 100MPa의 압력으로 성형한 후, 전기로 또는 가스로를 이용하여 1200℃ 내지 1500℃의 온도에서 2시간 동안 소결하여 제조된다.

[0138]

[0139] 본 발명의 제조방법에 의해 제조된 고열전도성 마그네시아(MgO) 세라믹스는 마그네시아(MgO)의 이론밀도($3.58g/cm^3$) 대비 93% 내지 100%의 상대밀도 값을 나타낼 수 있다. 또는 Mg보다 무거운 도너 원소가 첨가될 경우, $3.58g/cm^3$ 보다 높은 밀도를 보일 수 있다. 고열전도성 마그네시아(MgO) 세라믹스는 $10.4mm^2/s$ 내지 $21.9mm^2/s$의 열확산도 값을 나타낼 수 있다.

[0140]

[0141] 도 14는 마그네시아(MgO)에 2.0 wt.% TiO_2 조성물을 첨가한 시편과 마그네시아(MgO)에 2.0 wt.% ZrO_2 조성물을 첨가한 시편을 각각 1400℃에서 2시간 동안 소결한 후 그 파단면을 전자현미경으로 관찰한 미세구조의 사진이다.

[0142] 도 14를 참조하면, 1400℃에서 소결된 경우 매우 치밀한 미세구조를 보인다.

[0143]

[0144] 이와 같이 마그네시아 및 그 제조 방법, 및 고열전도성 마그네시아 조성물, 이를 이용한 마그네시아 세라믹스에 대하여 그 구체적인 실시예를 살펴보면 다음과 같다.

[0145]

[0146] **1. 밀도**

[0147] 자일렌을 사용하여 아르키메데스 법으로 측정하였다.

[0148] **2. 열확산도**

[0149] Laser flash method를 사용하여 측정하였다. (LFA 457, MicroFlash, Netzsch Instruments Inc., Germany)

[0150]

[0151] [표 1]은 본 발명에서 제공되는 온도 범위에서 마그네시아(MgO) 조성물의 소결한 시편의 밀도 및 열확산도 특성을 나타낸 것이다.

[0152] [표 1]

구분	첨가량 (wt.%) 첨가제											소결온도 (℃)	밀도 (g/cm³)	열확산도 (mm²/s)
	TiO_2	Nb_2O_5	ZrO_2	Al_2O_3	V_2O_5	B_2O_3	Y_2O_3	SiO_2	Eu_2O_3	Er_2O_3	Fe_2O_3			
실시예1	0.5											1300	3.48	16.4
실시예2	1.5											1300	3.52	16.6
실시예3	10.0											1300	3.53	10.4
실시예4			0.5									1300	3.02	12.6
실시예5			4.0									1300	3.11	12.6
실시예6		1.0										1300	3.37	15.5
실시예7		3.0										1300	3.42	15.5
실시예8	0.3	0.3										1300	3.44	16.9
실시예9	0.3	0.3	0.05									1300	3.54	20.5
실시예10	0.3	0.3										1300	3.51	17.4
실시예11	0.3	0.3				0.2						1300	3.54	18.0
실시예12	0.3	0.3					0.2					1300	3.38	15.6
실시예13	0.3	0.3						0.2				1300	3.50	18.1
실시예14	0.3	0.3							0.1			1350	3.55	18.4
실시예15	0.3	0.3								0.1		1350	3.54	18.2
실시예16	0.5											1400	3.56	19.3
실시예17	1.5											1400	3.57	18.6
실시예18	10.0											1400	3.59	12.9
실시예19			2.0									1400	3.51	18.9
실시예20			3.0									1400	3.52	17.0
실시예21		1.0										1400	3.55	18.8
실시예22		2.0										1400	3.57	15.3
실시예23				0.8								1400	3.44	14.2
실시예24	0.3	0.3										1400	3.58	21.0
실시예25	0.3	0.3	0.05									1400	3.59	21.9
실시예26	0.3	0.3			0.2							1400	3.51	16.3
실시예27	0.3	0.3				0.2						1400	3.58	16.3
실시예28	0.3	0.3					0.2					1400	3.53	18.9
실시예29	0.3	0.3						0.2				1400	3.56	21.1
실시예30	0.3	0.3							0.1			1400	3.56	19.5
실시예31	0.3	0.3								0.1		1400	3.57	18.6
실시예32	0.1	0.2	0.6				0.03	0.1			0.01	1400	3.56	17.5
비교예1												1300	2.85	10.1
비교예2												1400	3.23	13.1
비교예3												1700	3.53	17.0

[0153]

[0154] **실시예 1** : 마그네시아(MgO)에 도너로 0.5wt.% 이산화티탄(TiO_2)을 첨가하여 볼 밀에서 2-프로판올을 용매로 혼합하고, 이후 이들을 분쇄하여 건조시킨다.

[0155] 건조된 혼합분말을 지름이 15mm인 원형의 금속몰드에서 100MPa의 압력으로 성형한 후, 전기로를 이용하여 1300℃의 온도에서 2시간 동안 소결한다.

[0156]

[0157] **실시예 2 ~ 32** : 실시예 1의 마그네시아(MgO)에 도너로 이산화티탄(TiO_2), 오산화니오비움(Nb_2O_5), 산화지르코늄(ZrO_2), 알루미나(Al_2O_3), V_2O_5, B_2O_3, Y_2O_3, SiO_2, Eu_2O_3, Er_2O_3, Fe_2O_3 등을 표 1에 나타낸 첨가량으로 첨가하며, 이들을 1300℃ 또는 1400℃ 온도에서 소결한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 과정으로 고열전도성 마그네시아 세라믹스를 제조하였다.

[0158]

[0159] **비교예 1** : 실시예 1의 마그네시아(MgO)에 도너를 첨가하지 않은 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 과정으로 마그네시아 세라믹스를 제조하였다.

[0160]

[0161] **비교예 2** : 실시예 1의 마그네시아(MgO)에 도너를 첨가하지 않으며, 상기 마그네시아(MgO)를 1400℃ 온도에서 소결한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 과정으로 마그네시아 세라믹스를 제조하였다.

[0162]

[0163] **비교예 3** : 실시예 1의 마그네시아(MgO)에 도너를 첨가하지 않으며, 상기 마그네시아(MgO)를 1700℃ 온도에서 소결한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일한 과정으로 마그네시아 세라믹스를 제조하였다.

[0164]

[0165] 상기 표 1을 참조하면, 1300℃ 내지 1400℃ 온도 범위에서 마그네시아(MgO) 조성물의 소결이 충분히 이루어 짐을 알 수 있으며, 도너 조성비에 따라 마그네시아(MgO) 세라믹스의 밀도 및 열확산도가 변화됨을 알 수 있다.

[0166]

[0167] 구체적으로, 상기 실시예 1 내지 실시예 32를 참조하면, 소결온도인 1300℃ 내지 1400℃의 온도범위에서 마그네시아(MgO)에 상기 이산화티탄(TiO_2), 오산화니오비움(Nb_2O_5), 산화지르코늄(ZrO_2), 알루미나(Al_2O_3), V_2O_5, B_2O_3, Y_2O_3, SiO_2, Eu_2O_3, Er_2O_3, 및 Fe_2O_3 중 1종 이상을 첨가하는 경우, 본 발명에 따른 마그네시아(MgO) 세라믹스는 3.02g/cm^3 내지 3.59g/cm^3의 우수한 소결 밀도 값을 나타냄을 알 수 있으며, 10.4mm^2/s 내지 21.9mm^2/s의 우수한 열확산도 값을 나타냄을 알 수 있다.

[0168]

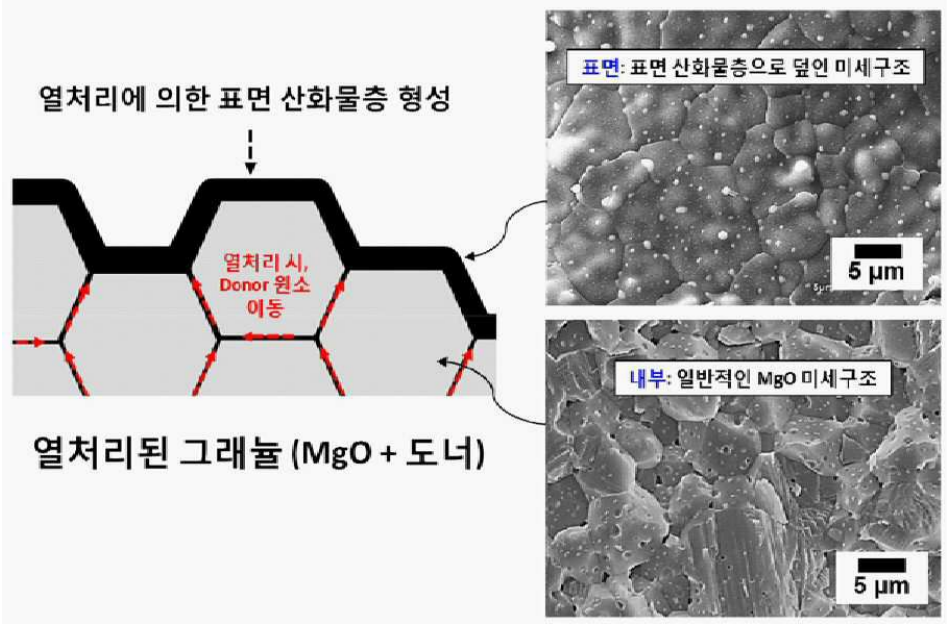
[0169] 이처럼, 종래의 마그네시아(MgO) 세라믹스 대비, 본 발명에 따른 제조 방법에 의해 제조된 고열전도성 마그네시아(MgO) 세라믹스는 높은 소결 밀도 값을 나타냄을 알 수 있다. 이에 따라, 본 발명에 따른 제조 방법에 의해 제조된 고열전도성 마그네시아(MgO) 세라믹스는 종래의 마그네시아(MgO) 세라믹스 대비, 높은 열확산도 값을 나타내며 방열 세라믹 소재에 적용 가능하다.

[0170]

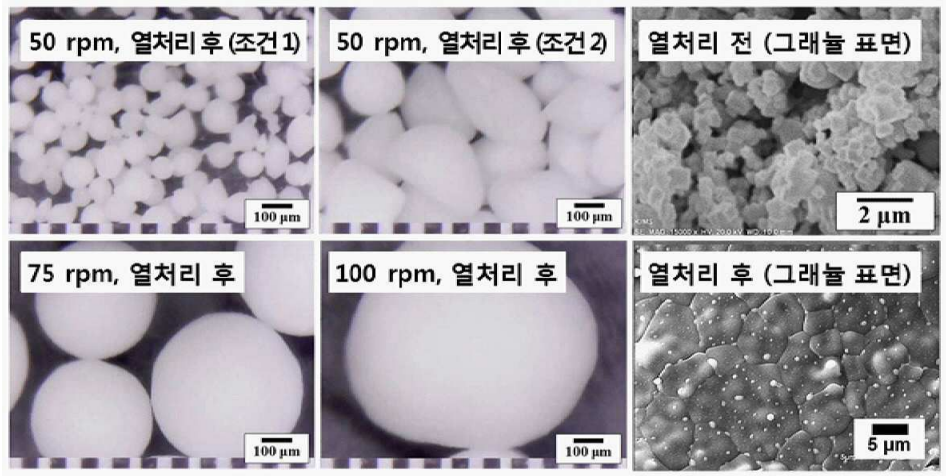
[0171] 이상과 같이 본 발명에 대해서 예시한 도면을 참조로 하여 설명하였으나, 본 명세서에 개시된 실시 예와 도면에 의해 본 발명이 한정되는 것은 아니며, 본 발명의 기술사상의 범위 내에서 통상의 기술자에 의해 다양한 변형이 이루어질 수 있음은 자명하다. 아울러 앞서 본 발명의 실시 예를 설명하면서 본 발명의 구성에 따른 작용 효과를 명시적으로 기재하여 설명하지 않았을 지라도, 해당 구성에 의해 예측 가능한 효과 또한 인정되어야 함은 당연하다.

도면

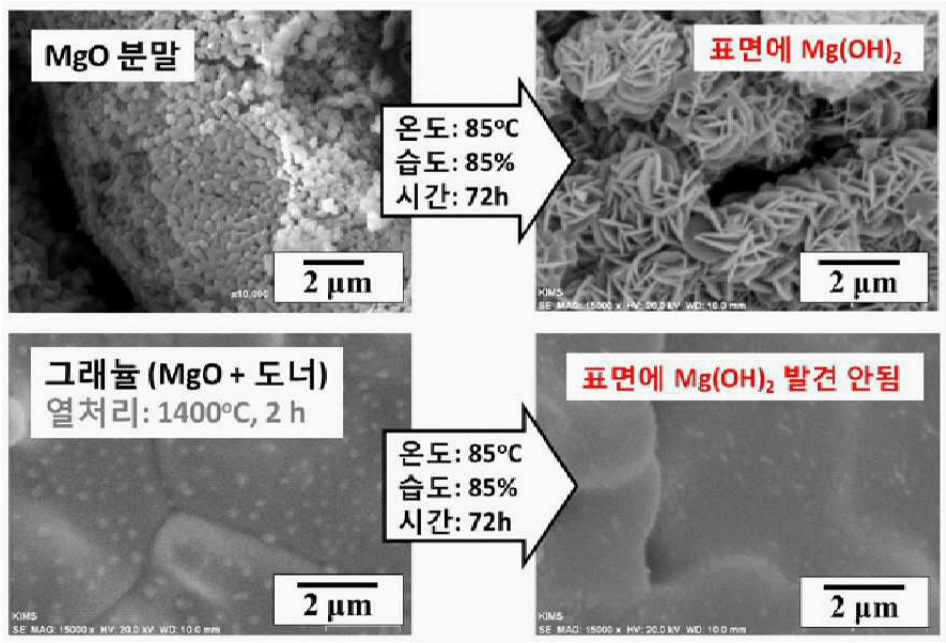
도면1



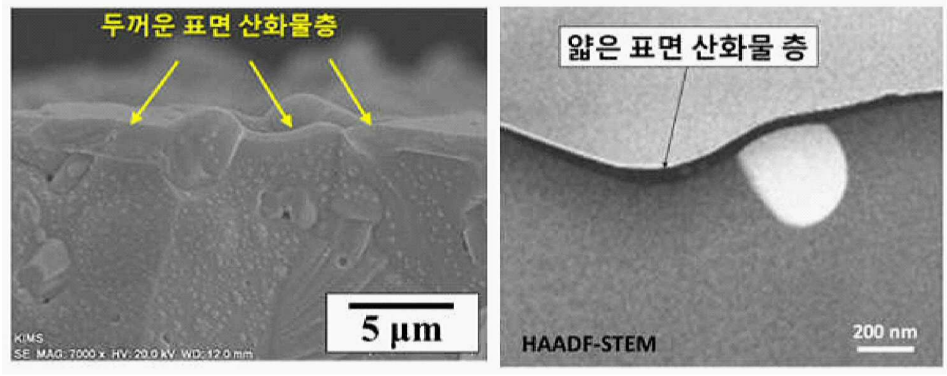
도면2


50 rpm, 열처리 후 (조건 1)
100 μm
50 rpm, 열처리 후 (조건 2)
100 μm
열처리 전 (그래뉼 표면)
2 μm
75 rpm, 열처리 후
100 μm
100 rpm, 열처리 후
100 μm
열처리 후 (그래뉼 표면)
5 μm

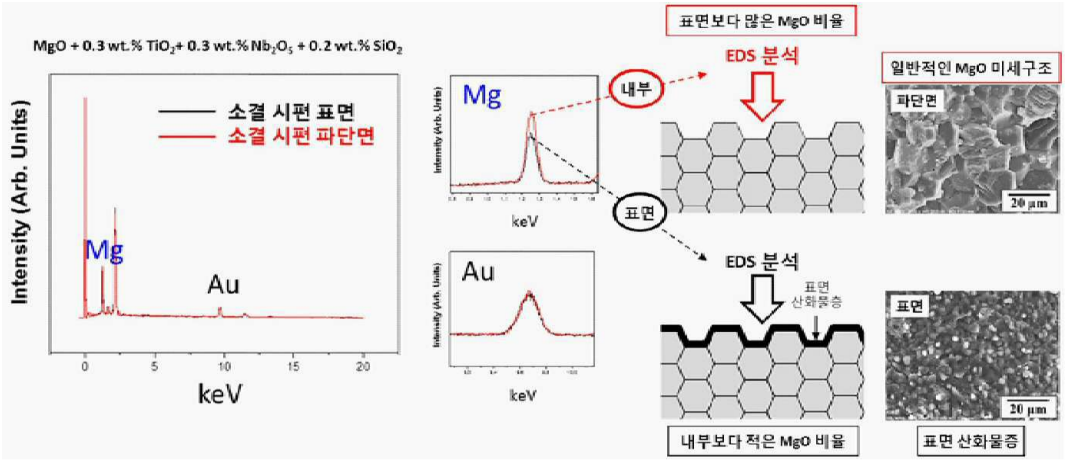
도면3


MgO 분말
2 μm
온도: 85°C
습도: 85%
시간: 72h
표면에 Mg(OH)2
2 μm
그래뉼 (MgO + 도너)
열처리: 1400°C, 2 h
2 μm
온도: 85°C
습도: 85%
시간: 72h
표면에 Mg(OH)2 발견 안됨
2 μm

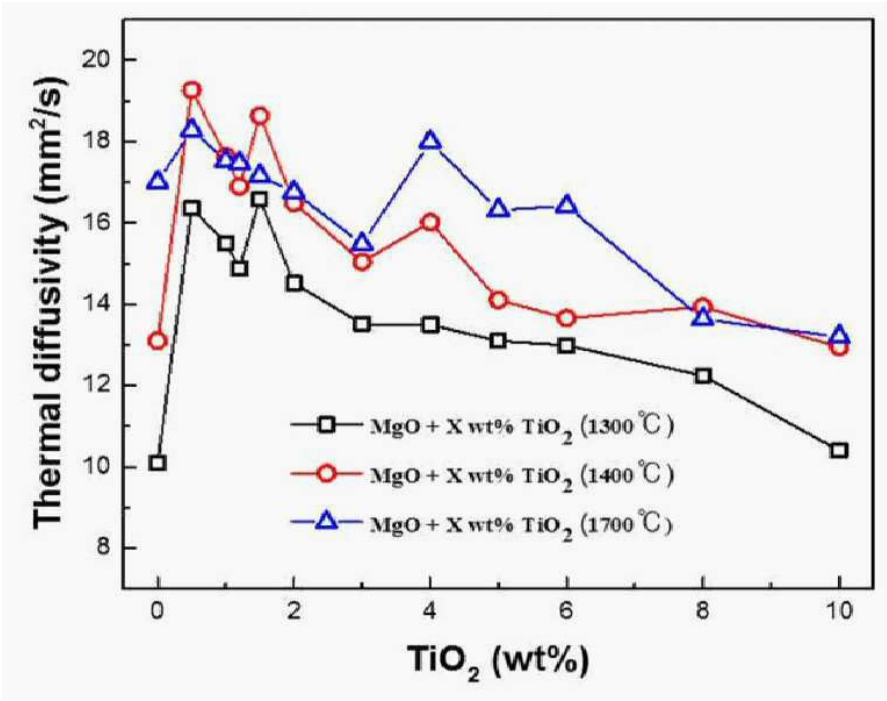
도면4


두꺼운 표면 산화물층
5 μm
얇은 표면 산화물 층
HAADF-STEM
200 nm

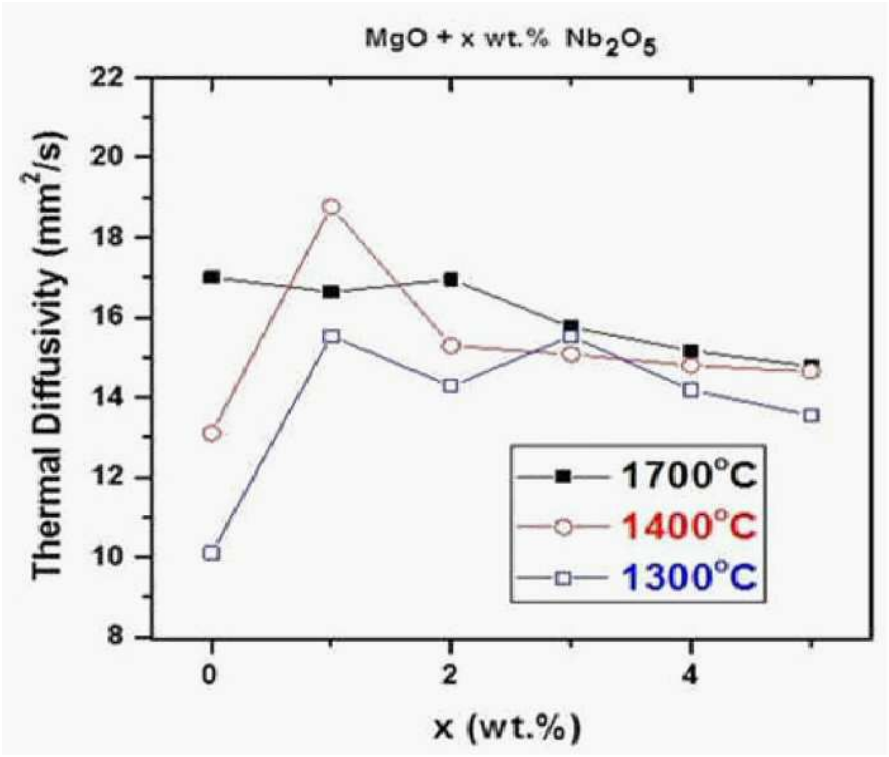
도면5


MgO + 0.3 wt.% TiO2 + 0.3 wt.% Nb2O5 + 0.2 wt.% SiO2
Intensity (Arb. Units)
소결 시편 표면
소결 시편 파단면
Mg
Au
keV
표면보다 많은 MgO 비율
EDS 분석
내부
표면
Mg
Au
keV
EDS 분석
표면 산화물층
내부보다 적은 MgO 비율
일반적인 MgO 미세구조
파단면
20 μm
표면
20 μm
표면 산화물층

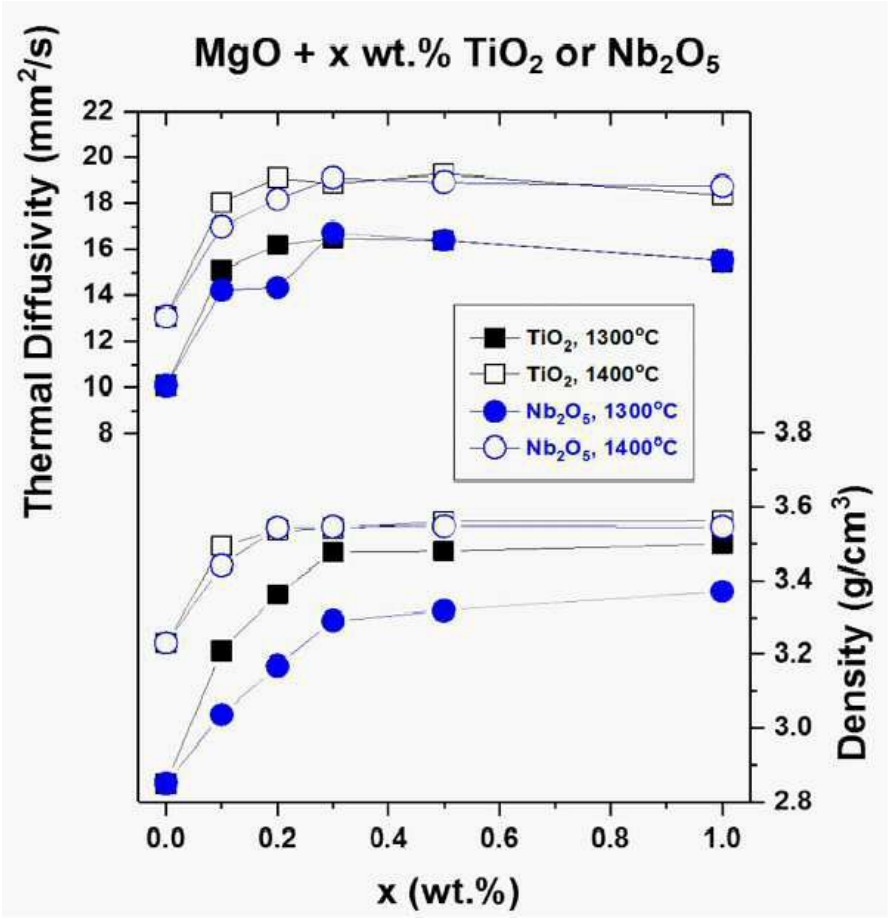
도면6


Thermal diffusivity (mm²/s)
TiO2 (wt%)
MgO + X wt% TiO2 (1300℃)
MgO + X wt% TiO2 (1400℃)
MgO + X wt% TiO2 (1700℃)

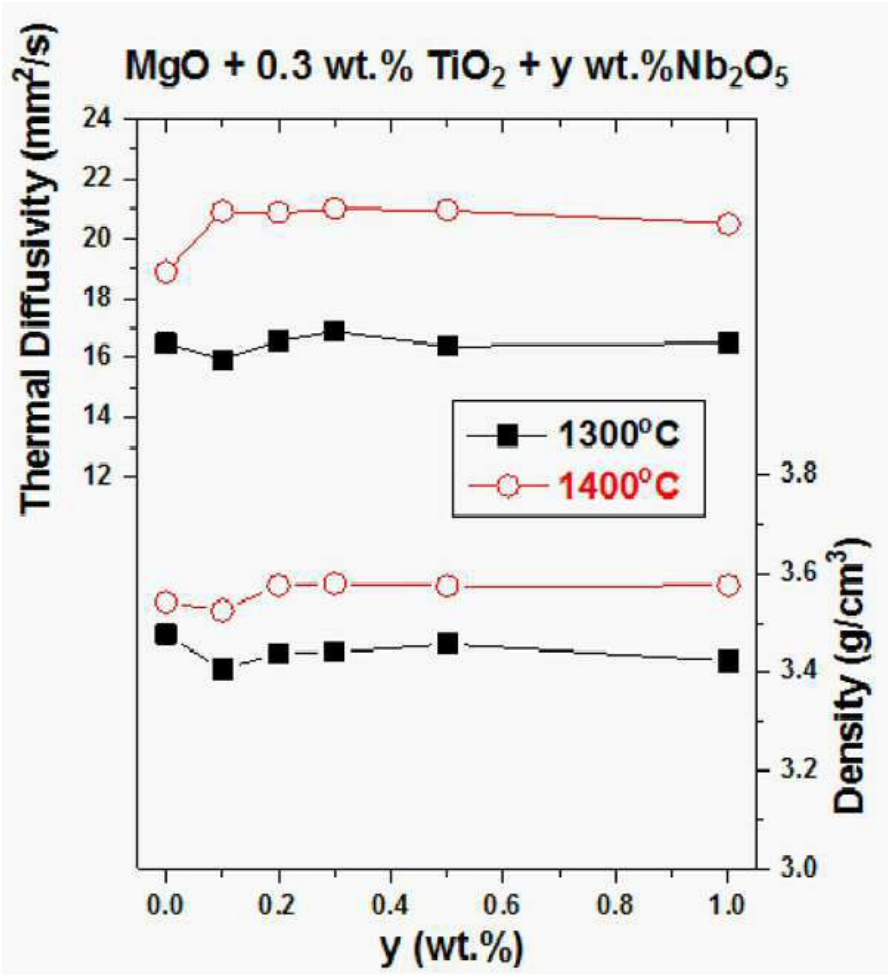
도면7


MgO + x wt.% Nb2O5
Thermal Diffusivity (mm2/s)
x (wt.%)
1700°C
1400°C
1300°C

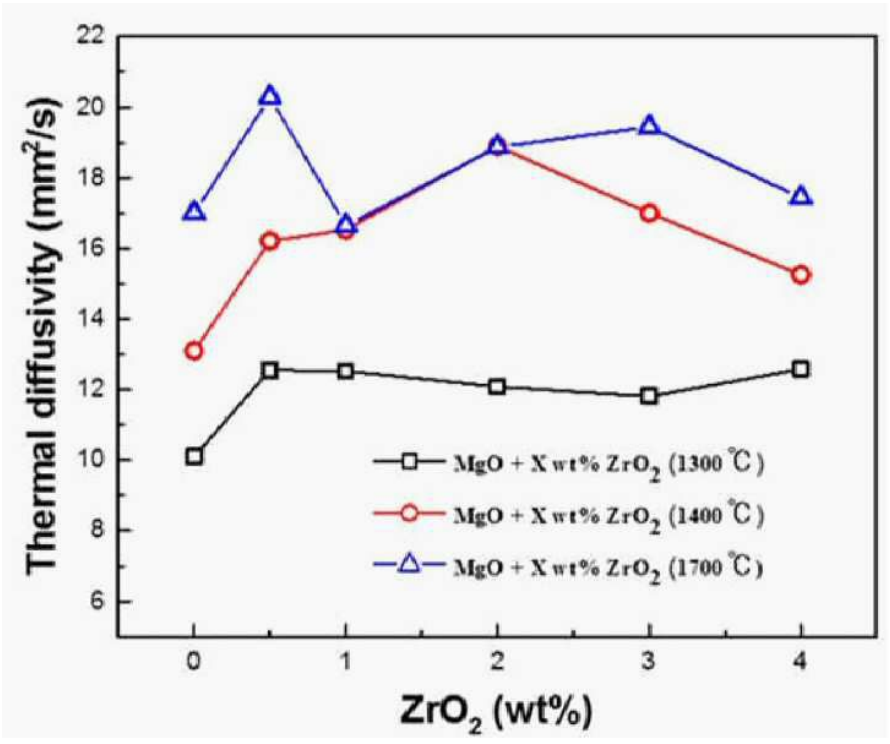
도면8


MgO + x wt.% TiO2 or Nb2O5
Thermal Diffusivity (mm2/s)
Density (g/cm3)
x (wt.%)
TiO2, 1300°C
TiO2, 1400°C
Nb2O5, 1300°C
Nb2O5, 1400°C

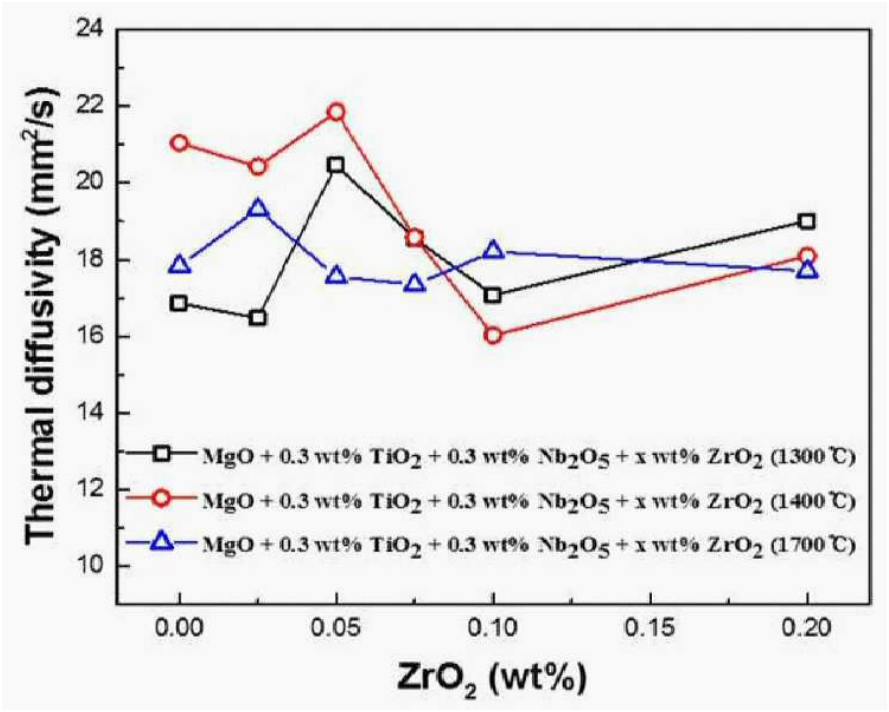
도면9


MgO + 0.3 wt.% TiO2 + y wt.%Nb2O5
Thermal Diffusivity (mm2/s)
Density (g/cm3)
y (wt.%)
1300°C
1400°C

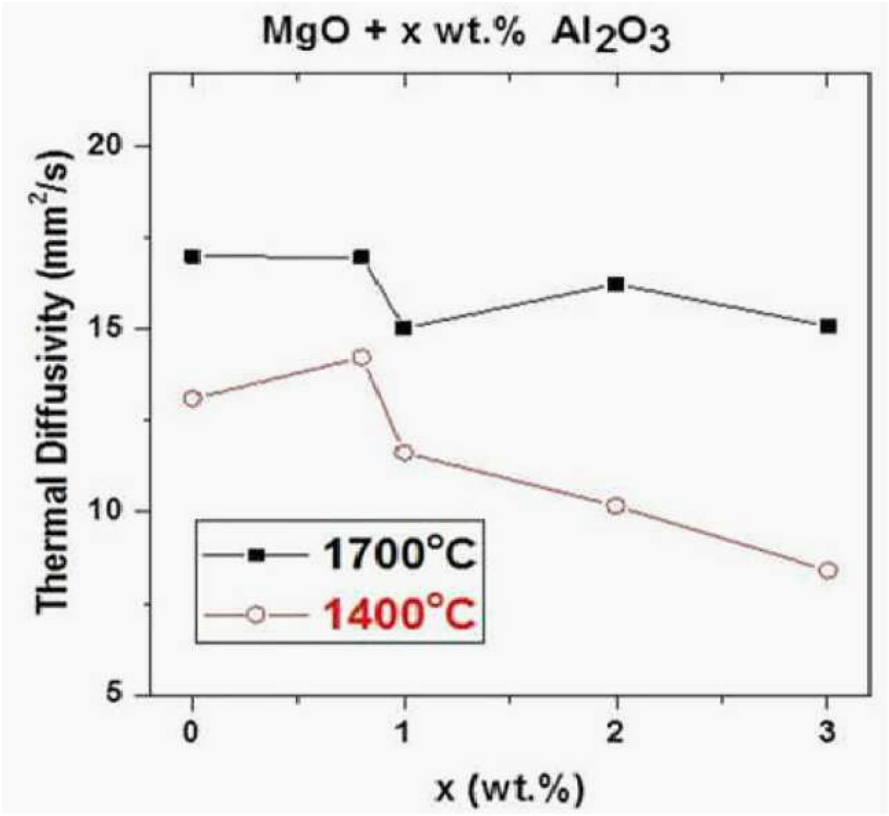
도면10


Thermal diffusivity (mm2/s)
ZrO2 (wt%)
MgO + X wt% ZrO2 (1300 ℃)
MgO + X wt% ZrO2 (1400 ℃)
MgO + X wt% ZrO2 (1700 ℃)

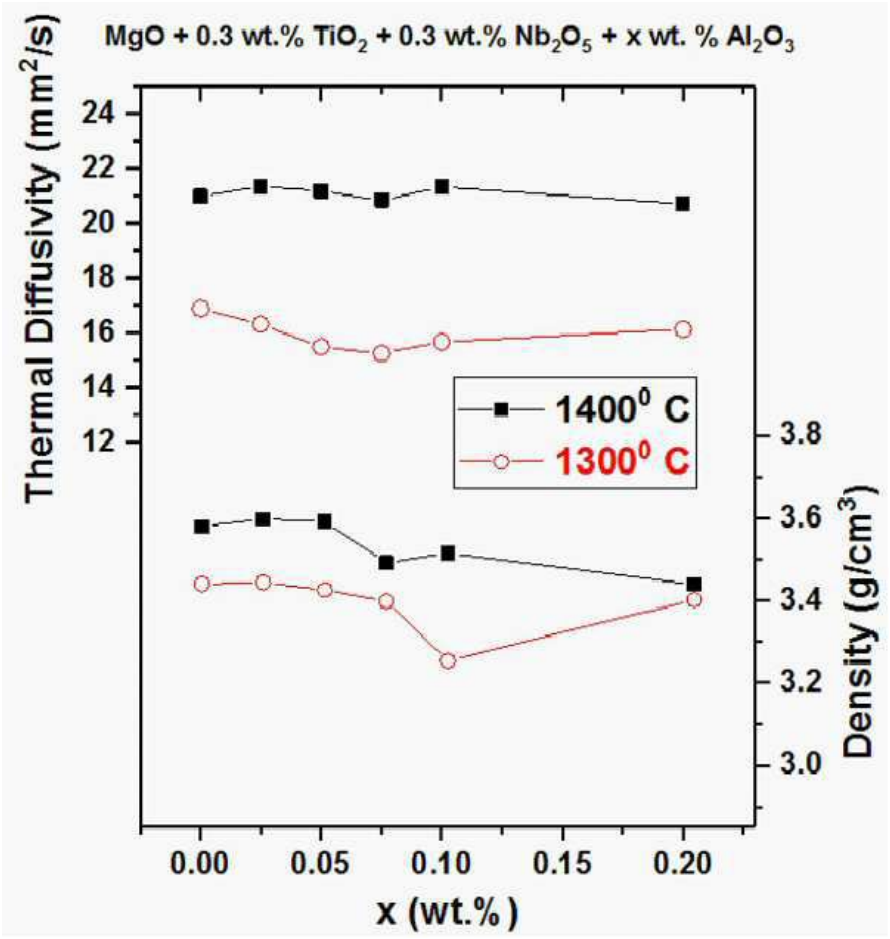
도면11


Thermal diffusivity (mm²/s)
24
22
20
18
16
14
12
10
0.00
0.05
0.10
0.15
0.20
ZrO2 (wt%)
MgO + 0.3 wt% TiO2 + 0.3 wt% Nb2O5 + x wt% ZrO2 (1300℃)
MgO + 0.3 wt% TiO2 + 0.3 wt% Nb2O5 + x wt% ZrO2 (1400℃)
MgO + 0.3 wt% TiO2 + 0.3 wt% Nb2O5 + x wt% ZrO2 (1700℃)

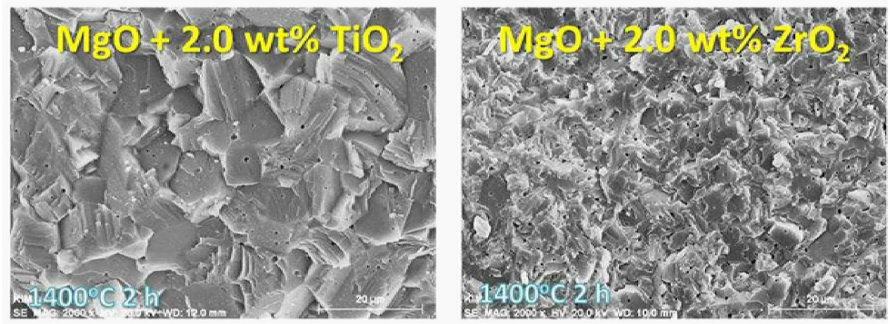
도면12


MgO + x wt.% Al2O3
Thermal Diffusivity (mm²/s)
20
15
10
5
0
1
2
3
x (wt.%)
1700°C
1400°C

도면13


MgO + 0.3 wt.% TiO2 + 0.3 wt.% Nb2O5 + x wt. % Al2O3
Thermal Diffusivity (mm2/s)
Density (g/cm3)
1400⁰ C
1300⁰ C
x (wt.%)
0.00
0.05
0.10
0.15
0.20
12
14
16
18
20
22
24
3.0
3.2
3.4
3.6
3.8

도면14


MgO + 2.0 wt% TiO2
1400°C 2 h
MgO + 2.0 wt% ZrO2
1400°C 2 h