(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2012년12월07일
(11) 등록번호 10-1210218
(24) 등록일자 2012년12월03일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 31/36 (2006.01) *C04B 35/565* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2010-0114095
(22) 출원일자 2010년11월16일
심사청구일자 2010년11월16일
(65) 공개번호 10-2012-0052787
(43) 공개일자 2012년05월24일
(56) 선행기술조사문헌
JP10120411 A*
JP62167212 X2*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
엘지이노텍 주식회사
서울특별시 중구 한강대로 416 (남대문로5가, 서울스퀘어)
(72) 발명자
김민성
서울특별시 중구 한강대로 416 (남대문로5가, 서울스퀘어)
채경훈
서울특별시 중구 한강대로 416 (남대문로5가, 서울스퀘어)
(74) 대리인
서교준

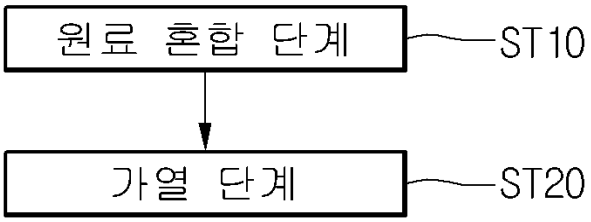
전체 청구항 수 : 총 11 항 심사관 : 임도경

(54) 발명의 명칭 **탄화 규소 및 이의 제조 방법**

(57) 요 약

실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법은, 규소원과 탄소원을 혼합하는 원료 혼합 단계; 및 상기 혼합된 원료를 가열하여 탄화 규소를 형성하는 가열 단계를 포함하고, 상기 가열 단계의 압력이 상압보다 높다.

대 표 도 - 도1



특허청구의 범위

청구항 1

삭제

청구항 2

삭제

청구항 3

규소원과 탄소원을 혼합하는 원료 혼합 단계; 및

상기 혼합된 원료를 가열하여 탄화 규소를 형성하는 가열 단계

를 포함하고,

상기 가열 단계는 1MPa 내지 10 MPa의 불활성 기체 분위기에서 수행되는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 4

제3항에 있어서,

상기 불활성 기체가 아르곤 기체를 포함하는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 아르곤 기체의 순도가 5N 이상인 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 6

제3항에 있어서,

상기 가열 단계는 가스 가압 소결로(gas pressure sintering furnace) 또는 열간 등방압 프레스(hot isotatic pressure, HIP) 장치에서 수행되는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 7

제3항에 있어서,

상기 탄화 규소가 베타상을 가지는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 가열 단계의 온도가 1400~1800℃인 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 9

제3항에 있어서,

상기 탄소원이 고체 탄소원 및 유기 탄소 화합물 중 적어도 하나를 포함하는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 10

제9항에 있어서,

상기 고체 탄소원이 흑연(graphite), 카본 블랙(carbon black), 카본 나노 튜브(carbon nano tube, CNT) 및 풀러렌(fullerene, C_{60})으로 이루어진 군에서 선택된 물질을 적어도 하나 포함하는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 11

제9항에 있어서,

상기 유기 탄소 화합물이 페놀(penol), 프랑(franc), 자일렌(xylene), 폴리이미드(polyimide), 폴리우레탄(polyunrethane), 폴리비닐알콜(polyvinyl alcohol), 폴리아크릴로니트릴(polyacrylonitrile) 및 폴리비닐아세테이트(poly (vinyl acetate))으로 이루어진 군에서 선택된 물질을 적어도 하나 포함하는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 12

제3항에 있어서,

상기 규소원이 실리카(silica) 분말, 실리카 솔(silica sol), 실리카 겔(silica gel) 및 석영 분말로 이루어진 군에서 선택된 적어도 어느 하나를 포함하는 탄화 규소의 제조 방법.

청구항 13

제3항 내지 제12항 중 어느 한 항에 따른 탄화 규소의 제조 방법에 의해 제조된 탄화 규소.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 기재는 탄화 규소 및 이의 제조 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 탄화 규소(silicon carbide, SiC)는 물리, 화학적으로 안정하고 내열성과 열전도성이 좋아 고온 안정성, 고온 강도 및 내마모성이 우수하다. 이에 따라 탄화 규소는 고온 재료, 고온 반도체, 내마모성 재료, 자동차 부품 등에 널리 사용된다.

[0003] 이러한 탄화 규소는 규소원과 탄소원 등의 원료를 혼합한 후 가열하는 방법 등에 의해 제조될 수 있다. 이때, 혼합된 원료는 진공 분위기에서 고온으로 가열되는데, 고온에 의하여 탄화 규소가 비정상적으로 성장될 수 있다. 이에 따라 탄화 규소의 결정성이 낮으며 입경을 균일하게 하는 것이 어려웠다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0004] 실시예는 입자 균일도 및 결정성을 향상할 수 있는 탄화 규소의 제조 방법 및 이에 의해 제조된 탄화 규소를 제공하고자 한다.

과제의 해결 수단

[0005] 실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법은, 규소원과 탄소원을 혼합하는 원료 혼합 단계; 및 상기 혼합된 원료를 가열하여 탄화 규소를 형성하는 가열 단계를 포함하고, 상기 가열 단계의 압력이 상압보다 높다.

[0006] 상기 가열 단계는 1~200 MPa의 불활성 기체 분위기에서 수행될 수 있다.

[0007] 상기 가열 단계는 1~10 MPa의 불활성 기체 분위기에서 수행될 수 있다.

[0008] 상기 불활성 기체가 아르곤 기체를 포함할 수 있다.

[0009] 상기 아르곤 기체의 순도가 5N 이상일 수 있다.

[0010] 상기 가열 단계는 가스 가압 소결로(gas pressure sintering furnace) 또는 열간 등방압 프레스(hot isotatic pressure, HIP) 장치에서 수행될 수 있다.

[0011] 상기 탄화 규소가 베타상을 가질 수 있다.

[0012] 상기 가열 단계의 온도가 1400~1800℃일 수 있다.

[0013] 상기 탄소원이 고체 탄소원 및 유기 탄소 화합물 중 적어도 하나를 포함할 수 있다.

[0014] 상기 고체 탄소원이 흑연(graphite), 카본 블랙(carbon black), 카본 나노 튜브(carbon nano tube, CNT) 및 풀러렌(fullerene, C_{60})으로 이루어진 군에서 선택된 물질을 적어도 하나 포함할 수 있다.

[0015] 상기 유기 탄소 화합물이 페놀(penol), 프랑(franc), 자일렌(xylene), 폴리이미드(polyimide), 폴리우레탄(polyunrethane), 폴리비닐알콜(polyvinyl alcohol), 폴리아크릴로니트릴(polyacrylonitrile) 및 폴리비닐아세테이트(poly (vinyl acetate))으로 이루어진 군에서 선택된 물질을 적어도 하나 포함할 수 있다.

[0016] 상기 규소원이 실리카(silica) 분말, 실리카 솔(silica sol), 실리카 겔(silica gel) 및 석영 분말로 이루어진 군에서 선택된 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.

[0017] 실시예에 따른 탄화 규소는 상술한 탄화 규소의 제조 방법에 의해 제조된다.

발명의 효과

[0018] 실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법은, 상압보다 높은 압력에서 혼합된 원료를 가열하는 것에 의하여 탄화 규소가 비정상적으로 성장하는 것을 방지할 수 있다. 이에 의하여 제조된 탄화 규소의 입자 균일도 및 결정성을 향상할 수 있다.

[0019] 따라서, 실시예에 따라 제조된 탄화 규소는 입자가 미세하고 균일하며 결정성이 우수하다. 따라서 이러한 탄화 규소를 일정 형상으로 소결할 때 소결이 잘 일어나므로 소결 후 밀도를 향상할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0020] 도 1은 실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법의 공정 흐름도이다.

도 2는 제조예에 따라 제조된 탄화 규소의 사진이다.

도 3은 비교예에 따라 제조된 탄화 규소의 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0021] 이하, 첨부한 도면을 참조하여 본 발명의 실시예를 상세하게 설명하면 다음과 같다. 이에 도 1을 참조하여 실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법을 설명한다. 도 1은 실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법의 공정 흐름도이다.

[0022] 도 1을 참조하면, 본 실시예에 따른 탄화 규소의 제조 방법은, 원료 혼합 단계(ST10) 및 가열 단계(ST20)를 포함한다. 각 단계를 좀더 상세하게 설명하면 다음과 같다.

[0023] 원료 혼합 단계(ST10)에서는, 규소원(Si source)과 탄소원(C source)를 준비하여 이를 혼합한다. 이때, 일례로 99.99% 이상의 순도를 가지는 규소원과 탄소원을 사용하여 탄화 규소를 고순도로 제조할 수 있다.

[0024] 규소원은 규소를 제공할 수 있는 다양한 물질을 포함할 수 있다. 일례로, 규소원은 실리카(silica)를 포함할 수 있다. 이러한 규소원으로는 실리카 분말, 실리카 솔(sol), 실리카 겔(gel), 석영 분말 등을 들 수 있다. 그러나 실시예가 이에 한정되는 것은 아니며 규소를 포함하는 유기 규소 화합물을 규소원으로 사용할 수 있다.

[0025] 탄소원은 고체 탄소원 또는 유기 탄소 화합물을 포함할 수 있다.

[0026] 고체 탄소원으로는 흑연(graphite), 카본 블랙(carbon black), 카본 나노 튜브(carbon nano tube, CNT), 풀러렌(fullerene, C_{60}) 등을 들 수 있다.

[0027] 유기 탄소 화합물로는 페놀(penol), 프랑(franc), 자일렌(xylene), 폴리이미드(polyimide), 폴리우레탄(polyunrethane), 폴리비닐알콜(polyvinyl alcohol), 폴리아크릴로니트릴(polyacrylonitrile), 또는 폴리비닐아세테이트 (poly (vinyl acetate)) 등을 들 수 있다. 그 외에도 셀룰로오스(cellulose), 제당, 피치(pitch), 타르(tar) 등을 사용할 수 있다.

[0028] 이러한 규소원과 탄소원은 볼 밀(ball mill), 어트리션 밀(attrition mill), 3롤 밀(3 roll mill) 등의 방법으로 혼합하여 혼합 분말을 회수한다. 혼합 분말은 체(sieve)에 의해 걸려져서 회수될 수 있다. 유기 탄소 화합물

을 사용한 경우에는 회수된 혼합 분말이 스프레이 건조기(spray dryer) 등에서 건조될 수 있다.

[0029] 이러한 원료 혼합 단계(ST10)에서 규소원에 포함된 규소에 대한 탄소원에 포함된 탄소의 몰(mole)비(이하 “규소에 대한 탄소의 몰비”)는 4 이하일 수 있다. 이는 탄화 규소의 생성에 필요한 탄소와 규소의 양을 고려한 것으로, 좀더 바람직하게는 상술한 규소에 대한 탄소의 몰비가 1.5 내지 3일 수 있다.

[0030] 규소에 대한 탄소의 몰비가 3을 초과하는 경우에는 탄소의 양이 많아 반응에 참여하지 않고 잔류하는 잔류 탄소의 양이 많아 회수율을 저하시킬 수 있다. 그리고 규소에 대한 탄소의 몰비가 1.5 미만인 경우에는 규소의 양이 많아 반응에 참여하지 않고 잔류하는 잔류 규소의 양이 많아 회수율을 저하시킬 수 있다. 즉 상기 규소에 대한 탄소의 몰비는 회수율을 고려하여 결정된 것이다.

[0031] 이어서, 가열 단계(ST20)에서는 혼합 분말(즉, 혼합된 원료)을 가열한다. 그러면, 아래의 반응식 1 및 2의 단계에 의하여 반응식 3의 전체 반응식에 의하여 탄화 규소가 형성된다.

[0032] [반응식 1]

[0033] $SiO_2(s) + C(s) \rightarrow SiO(g) + CO(g)$

[0034] [반응식 2]

[0035] $SiO(g) + 2C(s) \rightarrow SiC(s) + CO(g)$

[0036] [반응식 3]

[0037] $SiO_2(s) + 3C(s) \rightarrow SiC(s) + 2CO(g)$

[0038] 상술한 바와 같은 반응이 원활하게 일어날 수 있도록 가열 온도는 1300℃ 이상일 수 있다. 이때, 가열 온도를 1400~1800℃로 하여 제조된 탄화 규소가 저온 안정상인 베타상을 가지도록 할 수 있다. 이러한 베타상은 미세한 입자로 이루어져서 탄화 규소의 강도 등을 향상할 수 있다. 그러나 실시예가 이에 한정되는 것은 아니다. 따라서 가열 온도를 1800℃를 초과하도록 하여 탄화 규소가 고온 안정상인 알파상을 가질 수도 있음은 물론이다.

[0039] 가열 단계(ST20)에서의 가열 시간은 30분 이상, 예를 들어, 1 시간 내지 7 시간일 수 있다. 그러나 실시예가 이에 한정되는 것은 아니며 가열 시간은 탄화 규소를 형성하기에 적합하도록 선택될 수 있다.

[0040] 본 실시예에서는 가열 단계(ST20)가 상압(대략, 1 기압)보다 높은 압력에서 수행되어, 고온에서 수행되는 가열 단계(ST20)에서 탄소원, 규소원, 그리고 탄화 규소의 입자가 성장하는 것을 방지할 수 있다. 즉, 높은 압력이 입자의 성장을 방해 및 억제하는 요인으로 작용하므로 고온에서 입자가 비정상적으로 성장하는 것을 억제할 수 있다.

[0041] 일례로, 가열 단계(ST20)가 1~200 MPa의 불활성 기체 분위기에서 수행될 수 있다.

[0042] 여기서, 압력이 1 Mpa 미만인 경우에는 입자 성장을 충분히 억제하지 못할 수 있으며, 압력이 200 MPa를 초과하는 경우에는 이러한 높은 압력을 가하기 어려워서 공정 상 어려움이 있다. 압력이 1~10 MPa일 경우에는 가스 가압 소결로(gas pressure sintering furnace)를 이용할 수 있으며, 압력이 10~200 MPa일 경우에는 열간 등방압 프레스(hot isotatic pressure, HIP) 장치를 이용할 수 있다. 열간 등방압 프레스 장치는 대체로 고가인 바, 압력을 1~10 Mpa로 유지하여 가스 가압 소결로를 이용함으로써 비정상적인 입자 성장을 억제하면서도 설비비에 대한 부담을 줄일 수 있다.

[0043] 불활성 기체를 이용하는 것은 탄화 규소의 합성 시 원하지 않는 부반응이 발생하는 것을 방지하기 위함이다. 이러한 불활성 기체 중에서는 탄화 규소와의 반응이 일어나지 않는 물질인 아르곤 기체 등을 사용할 수 있다. 상기 아르곤 기체는 순도가 5N 이상일 수 있다. 이는 상술한 부반응을 효과적으로 방지하기 위한 범위로 한정된 것이나, 실시예가 이에 한정되는 것은 아니다.

[0044] 이렇게 제조된 탄화 규소는 가열 단계(ST20)에서의 비정상적인 입자 성장이 억제되어 입자가 미세하고 균일하며 결정성이 우수하다. 일례로, 이러한 탄화 규소는 0.1~30㎛의 입경을 가질 수 있다.

[0045] 이러한 탄화 규소는 프레스 소결 등을 통하여 소정 형상으로 가공되어 증착 장비 또는 웨이퍼 캐리어 장비 등에 서셉터(susceptor) 등으로 사용될 수 있다. 이때, 본 실시예의 탄화 규소는 입자의 균일도 및 결정성이 우수하므로 소결 특성이 우수하여, 소결 후 밀도를 향상시킬 수 있다.

[0046] 이하, 제조예 및 비교예에 따른 탄화 규소의 제조 방법을 통하여 본 발명을 좀더 상세하게 설명한다. 이러한 제조예는 본 발명을 좀더 상세하게 설명하기 위하여 예시로 제시한 것에 불과하다. 따라서 본 발명이 이러한 제조예에 한정되는 것은 아니다.

[0047] 제조예

[0048] 건식 실리카(fumed silica)와 카본 블랙을 2:1의 몰비로 넣은 후 볼밀로 혼합하였다. 혼합된 원료를 가스 가압 소결로에 넣은 후 10MPa의 아르곤 기체 분위기에서 1500℃로 3시간 동안 가열하여 탄화 규소를 제조하였다.

[0049] 비교예

[0050] 가열 단계가 6×10^{-2} Torr의 진공 분위기에서 수행되었다는 점을 제외하고는 제조예와 동일한 방법에 의하여 탄화 규소를 제조하였다.

[0051] 제조예 및 비교예에 의해 제조된 탄화 규소는 평균 입경이 대략 1㎛였다. 이 탄화 규소의 X-선 회절(X-ray diffraction, XRD) 분석기의 메인 피크(main peak)의 상대적 강도(intensity)를 측정하고, 이 탄화 규소들을 동일한 프레스 장치에서 소결한 후의 밀도를 측정하여 이 결과를 표 1에 나타내었다. 그리고 제조예 및 비교예에 제조된 탄화 규소의 사진을 도 2 및 도 3에 각기 나타내었다.

표 1

[0052]

	XRD 분석기의 메인 피크의 상대적 강도	소결 후 밀도[g/cm^3]
제조예	2000	3.15
비교예	600	3.1

[0053] 표 1을 참조하면, 제조예에 따른 경우 XRD 분석기의 메인 피크 강도가 비교예보다 큰 것을 알 수 있다. 이로부터 제조예에 따른 탄화 규소의 결정성이 우수함을 알 수 있다. 그리고 도 2 및 도 3에서도 제조예에 따른 탄화 규소의 결정성이 비교예에 따른 탄화 규소의 결정성보다 우수한 것을 알 수 있다.

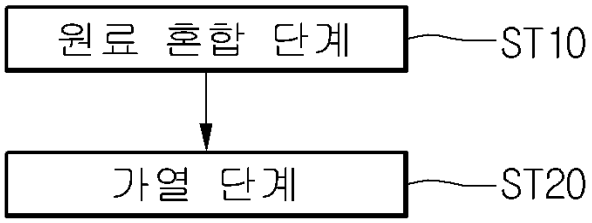
[0054] 또한, 표 1을 참조하면, 제조예에 따르면 소결 밀도가 비교예에 비하여 우수함을 알 수 있다. 이로부터 제조예에 따른 탄화 규소의 소결 특성이 우수함을 알 수 있다.

[0055] 상술한 실시예에 설명된 특징, 구조, 효과 등은 본 발명의 적어도 하나의 실시예에 포함되며, 반드시 하나의 실시예에만 한정되는 것은 아니다. 나아가, 각 실시예에서 예시된 특징, 구조, 효과 등은 실시예들이 속하는 분야의 통상의 지식을 가지는 자에 의하여 다른 실시예들에 대해서도 조합 또는 변형되어 실시 가능하다. 따라서 이러한 조합과 변형에 관계된 내용들은 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.

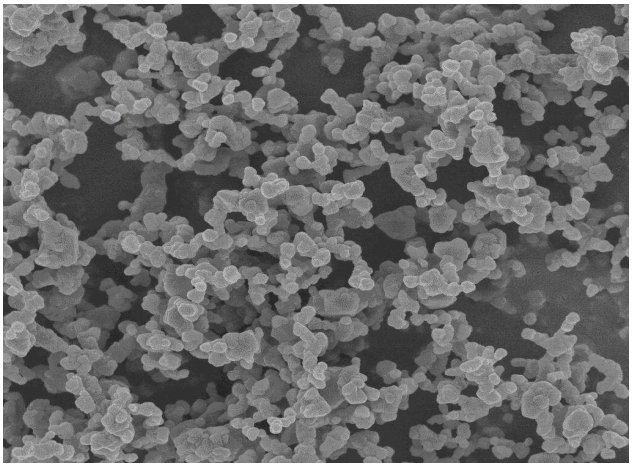
[0056] 또한, 이상에서 실시예들을 중심으로 설명하였으나 이는 단지 예시일 뿐 본 발명을 한정하는 것이 아니며, 본 발명이 속하는 분야의 통상의 지식을 가진 자라면 본 실시예의 본질적인 특성을 벗어나지 않는 범위에서 이상에 예시되지 않은 여러 가지의 변형과 응용이 가능함을 알 수 있을 것이다. 예를 들어, 실시예들에 구체적으로 나타난 각 구성 요소는 변형하여 실시할 수 있는 것이다. 그리고 이러한 변형과 응용에 관계된 차이점들은 첨부한 청구 범위에서 규정하는 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.

도면

도면1



도면2



도면3

