



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0011282
(43) 공개일자 2025년01월21일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H05K 7/20 (2006.01) H01L 23/373 (2006.01)
H05K 7/14 (2006.01)
(52) CPC특허분류
H05K 7/209 (2013.01)
H01L 23/373 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-0091476
(22) 출원일자 2023년07월14일
심사청구일자 2023년07월14일

(71) 출원인
경상국립대학교산학협력단
경상남도 진주시 진주대로 501 (가좌동)
(72) 발명자
이성갑
경상남도 진주시 가좌안골길21번길 5
(74) 대리인
김중석

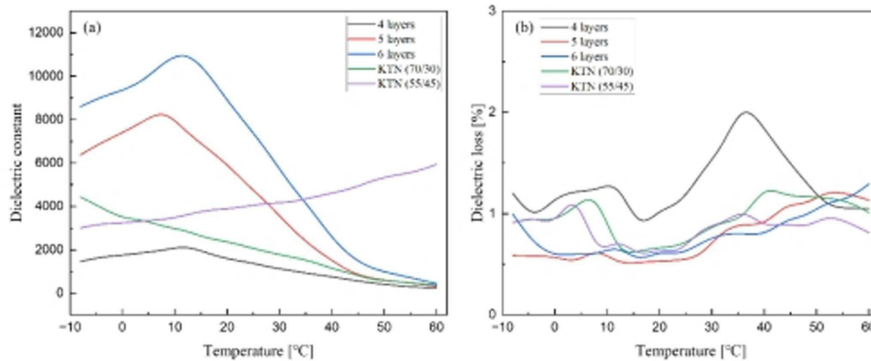
전체 청구항 수 : 총 17 항

(54) 발명의 명칭 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법 및 이를 이용한 데이터 센터 화재 방지 장치

(57) 요약

데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법 및 이를 이용한 데이터 센터 화재 방지 장치에 관한 것으로, 본 발명은 본 발명은 납을 사용하지 않으면서 뛰어난 특성을 가질 것으로 예상되는 물질의 박막을 제조하여 이를 통해 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자로서, 컴퓨터 반도체 보드에 상기 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 부착시켜 전력반도체에서 발생하는 열을 실온에서 강제로 냉각할 수 있는 효과가 있다.

대표도 - 도11



(52) CPC특허분류

H05K 7/1495 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1345366160
과제번호	2020R1A6A1A03038697
부처명	교육부
과제관리(전문)기관명	한국연구재단
연구사업명	이공학학술연구기반구축
연구과제명	그린에너지융합연구소
기 여 율	1/1
과제수행기관명	경상국립대학교
연구기간	2023.03.01 ~ 2024.02.29

명세서

청구범위

청구항 1

탄탈륨산칼륨(potassium tantalum oxide, KTaO_3)와 니오브산칼륨(Potassium Niobate, KNbO_3)를 혼합하여 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$) 용액을 제조하는 제1단계; 및

$\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막을 제조하는 제2단계;를 포함하여 제조하되,

상기 제1단계는,

건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate), 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide) 및 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 전구체로 준비하는 제1-1단계;

상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가한 후, 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)이 모두 녹을 때까지 가열 교반 후 냉각하여 아세트산 칼륨 냉각 용액을 제조하는 제1-2단계;

진공상태에서 상기 아세트산 칼륨 냉각 용액에 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가하여 가열 교반한 후 냉각하여 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조하는 제1-3단계;

진공상태에서 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액에 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 첨가하여 가열 교반한 후 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조하는 제1-4단계;

상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액에 아세틸아세톤(Acetylacetone)을 첨가하고 교반 후 에이징(aging)하는 제1-5단계;를 포함하여 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 제조하고,

상기 제2단계는,

P형 실리콘 기판을 세척 후 건조하는 제2-1단계;

상기 건조된 P형 실리콘 기판에 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 기판에 스핀 코팅하는 제2-2단계;

상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액이 스핀 코팅된 실리콘 기판을 건조 후 열분해하여 증착하는 제2-3단계;

상기 증착 후, 로에서 소결하여 박막을 제조하는 제2-4단계;를 포함하여 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막을 제조하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 제1-1단계에서 아세트산 칼륨(potassium acetate)의 건조는 85 내지 95 °C 오븐에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 건조하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 제1-2단계에서 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)의 가열 교반은 95 내지 105 °C에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 질소 분위기 하에서 수행하며, 상기 가열 교반 후 상온에서 냉각하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 제1-3단계에서 상기 아세트산 칼륨 냉각 용액에 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)의 가열 교반은 95 내지 105 ℃에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 질소 분위기 하에서 수행하며, 상기 가열 교반 후 상온에서 냉각하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조 방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 제1-4단계에서 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액에 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)의 가열 교반은 95 내지 105 ℃에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 질소 분위기 하에서 수행하며, 상기 가열 교반 후 상온에서 냉각하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 제1-5단계에서 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액에 아세틸아세톤(Acetylacetone)의 교반은 25 내지 35 분 동안 수행 후, 23 내지 25 시간 동안 에이징(aging)하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 제2-1단계에서 P형 실리콘 기판은 SiO_2 , Ti, Pt가 순서대로 적층 된 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 제2-2단계에서 스핀 코팅은,

450 내지 550 rpm의 회전속도로 4 내지 6 초 동안 1차 코팅 후,

2,800 내지 3,200 rpm으로 25 내지 35 초 동안 2차 코팅을 수행하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 9

제1항에 있어서,

상기 제2-3단계에서 열분해는 380 내지 420 ℃의 온도에서 8 내지 12 분 동안 수행하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 10

제1항에 있어서,

상기 제2-4단계에서 소결은 700 내지 800 °C의 온도에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 수행하는 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법.

청구항 11

전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 포함하되,

상기 냉각 소자는 페로브스카이트 구조를 가지는 강유전체 물질인 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

청구항 12

제11항에 있어서,

상기 냉각 소자는,

KTaO_3 와 KNbO_3 를 혼합하여 제조된 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 박막인 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

청구항 13

제12항에 있어서,

상기 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 박막의 평균 입자는 130 내지 150 nm 인 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

청구항 14

제12항에 있어서,

상기 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 박막의 최대 분극값은 $19.9 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 인 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

청구항 15

제12항에 있어서,

상기 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 박막의 최대 전기열량 계수(ΔT)는 0.62 K 인 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

청구항 16

제12항에 있어서,

상기 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 박막의 인가 전기장 대비 최대 전기열량 계수는 12.8 mK cm/kV 인 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

청구항 17

제12항에 있어서,

상기 KTN(potassium tantalate niobate, $K(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 박막은 기관에 탄탈륨산칼륨(potassium tantalum oxide, KTaO_3)과 니오브산칼륨(Potassium Niobate, KNbO_3)을 70:30 몰 비율(mol ratio)로 혼합한 용액인 KTN(70/30)과 55:45 몰 비율(mol ratio)로 혼합한 용액인 KTN(55/45) 용액을 한 층마다 번갈아 가며 6 회(layers) 코팅하여 제조된 것을 특징으로 하는, 데이터 센터 화재 방지 장치.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 본 발명은 납을 사용하지 않으면서 뛰어난 특성을 가질 것으로 예상되는 물질의 박막을 제조하여 이를 통해 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자로서, 컴퓨터 반도체 보드에 상기 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 부착시켜 전력반도체에서 발생하는 열을 실온에서 강제로 냉각할 수 있는 효과가 있다.

배경 기술

[0003] 냉장고나 에어컨과 같은 전자 제품을 사용할 때 발생하는 열은 제품 고장의 주원인 중 하나이다. 이를 해결하기 위하여 대표적으로 가장 널리 사용되었던 기술로는 증기 압축 냉동 방식으로, 프레온가스를 냉매로 사용하는데 프레온가스는 대기권에 노출되더라도 분해가 잘 되지 않고, 지속적으로 자외선에 노출되면 염소 원자가 분해되어 오존층을 파괴하는 주원인이 된다. 추가적으로 증기 압축 냉동 방식은 비교적 낮은 40- 50 %의 에너지 효율을 가지고 있어 이를 대체할 다른 냉각 기술들이 연구되어 왔다.

[0004] 이에 따라 기체를 냉매로 하여 냉각하는 방식이 아닌 Solid-state 냉각 기술에 대한 연구가 이루어졌다. 그 중 대표적으로 강유전체 물질을 이용한 전기열량 효과(Electrocaloric Effect) 냉각 방식이 있다. 전기열량 효과는 강유전체 세라믹에 전계를 인가하여 소자의 온도를 감소시킨다. 전기열량 효과를 이용한 냉각 방식은 다른 냉각 기술들과 비교하였을 때, 60~70%의 고효율을 가지고 있다는 장점이 있다. 기본적으로 전기열량 소자로서 강유전체 물질이 이용되고 있다. 해당 물질은 외부에서 전기장(Electric field)을 변화시켰을 때, 내부의 엔트로피 변화가 생겨나고 그로 인해서 분극 변화가 발생해 전기열량 효과가 나타난다. 전기열량 효과를 이용하는 냉각 방식은 프레온가스와 같은 냉매를 사용하지 않기 때문에 친환경 냉매로 많은 주목을 받고 있다. Lead Zirconate Titanate(PZT)를 이용한 전기열량 효과 실험의 연구 결과를 확인해보면 PZT 박막의 전기열량 계수가 12 K까지 확인되었다. 하지만 납은 뛰어난 전기열량 효율을 가지는 반면, 심각한 환경오염을 초래한다는 것으로 보고된 바 있다.

[0005] 한편, 데이터 센터에는 많은 수의 컴퓨터가 24시간 동작하며, 여기에는 많은 열을 발생하는 전력반도체가 사용된다. 현재는 공랭식으로 냉각을 하고 있지만, 완전한 열을 제거하지 못해 화재 사고가 빈번히 발생하며, 이 경우 국가적 재난으로 연결되고 있다. 예로 KT 데이터 센터, 네이버 데이터 센터 화재 사고로 인해 막대한 피해가 발생한다.

[0006] 본 발명은 본 발명은 납을 사용하지 않으면서 뛰어난 특성을 가질 것으로 예상되는 물질의 박막을 제조하여 이를 통해 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자로서, 컴퓨터 반도체 보드에 상기 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 부착시켜 전력반도체에서 발생하는 열을 강제로 냉각시킨다. 전기열량 효과는 현재 보고된 기술로는 약 200℃ 부근에서 냉각 효과를 나타내나, 본 발명에서 제조된 소재를 이용 할 경우 실온 부근 (20 ~ 60 ℃)에서 냉각 효과를 나타낼 수 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0008] (특허문헌 0001) 한국등록특허 제10-2022429호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0009] 본 발명은 상기의 문제점을 해결하기 위해서 안출된 것으로서, 본 발명의 목적은 전기열량 효과를 이용하여 반도체 소자의 발열을 감지할 수 있는 화재 방지 장치를 제공하는 것이다.

[0010] 발명이 해결하고자 하는 기술적 과제들은 이상에서 언급한 기술적 과제들로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 기술적 과제들은 아래의 기재로부터 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

[0012] (1) 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법

[0013] 본 발명에 따른 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법은,

[0014] KTaO_3 와 KNbO_3 를 혼합하여 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 용액을 제조하는 제1단계; 및

[0015] $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 박막을 제조하는 제2단계;를 포함하여 제조하되,

[0016] 상기 제1단계는,

[0017] 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate), 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide) 및 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 전구체로 준비하는 제1-1단계;

[0018] 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가한 후, 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)이 모두 녹을 때까지 가열 교반 후 냉각하여 아세트산 칼륨 냉각 용액을 제조하는 제1-2단계;

[0019] 진공상태에서 상기 아세트산 칼륨 냉각 용액에 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가하여 가열 교반한 후 냉각하여 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조하는 제1-3단계;

[0020] 진공상태에서 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액에 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 첨가하여 가열 교반한 후 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조하는 제1-4단계;

[0021] 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액에 아세틸아세톤(Acetylacetone)을 첨가하고 교반 후 에이징(aging)하는 제1-5단계;를 포함하여 상기 $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 제조하고,

[0022] 상기 제2단계는,

[0023] P형 실리콘 기판을 세척 후 건조하는 제2-1단계;

[0024] 상기 건조된 P형 실리콘 기판에 상기 $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 기판에 스핀 코팅하는 제2-2단계;

[0025] 상기 $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 용액이 스핀 코팅된 실리콘 기판을 건조 후 열분해하여 증착하는 제2-3단계;

[0026] 상기 증착 후, 로에서 소결하여 박막을 제조하는 제2-4단계;를 포함하여 상기 $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 박막을 제조하는 것을 특징으로 한다.

[0028] (2) 데이터 센터 화재 방지 장치

[0029] 본 발명에 따른 데이터 센터 화재 방지 장치는,

- [0030] 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 포함하되,
- [0031] 상기 냉각 소자는 페로브스카이트 구조를 가지는 강유전체 물질인 것을 특징으로 한다.

발명의 효과

- [0033] 상기 과제의 해결 수단에 의해, 본 발명은 본 발명은 납을 사용하지 않으면서 뛰어난 특성을 가질 것으로 예상되는 물질의 박막을 제조하여 이를 통해 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자로서, 컴퓨터 반도체 보드에 상기 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 부착시켜 전력반도체에서 발생하는 열을 강제로 냉각시킨다.
- [0034] 일반적인 기술로 전기열량 효과는 약 200 ℃ 부근에서 냉각 효과를 나타내나, 본 발명에서 제조된 소재를 이용할 경우 실온 부근 (20 ~ 60 ℃)에서 냉각 효과를 나타낼 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0036] 도 1은 본 발명의 일실시예에 따른 32가지 결정질 등급의 도식이다.
- 도 2는 본 발명의 일실시예에 따른 강유전체의 이력 루프이다.
- 도 3은 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 의 구조이다.
- 도 4는 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 의 위상도이다.
- 도 5는 본 발명의 일실시예에 따른 병렬 플레이트 커패시터이다.
- 도 6은 본 발명의 일실시예에 따른 전기열량 효과의 개략도이다.
- 도 7은 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 X선 회절 패턴으로, (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.
- 도 8은 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 SEM 표면 이미지(x30,000)로, (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.
- 도 9는 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 SEM 섹션 이미지(x30,000)로, (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.
- 도 10은 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막(6층)의 TEM 이미지 및 EDS 이다.
- 도 11은 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 (a) 유전율의 온도 의존성과 (b) 유전 손실이다.
- 도 12는 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 (a) 유전 상수와 (b) 유전 손실의 주파수 의존성이다.
- 도 13은 본 발명의 일실시예에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 히스테리시스 루프(hysteresis loops)의 변화 온도로, (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.
- 도 14는 본 발명의 일실시예에 따라, 온도 변화에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 편광으로, (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.
- 도 15는 본 발명의 일실시예에 따라, $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 잔류 분극 및 항전계(coercive field)이다,
- 도 16은 본 발명의 일실시예에 따라, 온도 변화에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 전기열량계수로, (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.
- 도 17은 본 발명의 일실시예에 따라, 온도 변화에 따른 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 전기열효율로 (a) 4 층, (b) 5 층, (c) 6 층, (d) KTN(70/30), (e) KTN(55/45) 이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0037] 본 명세서에서 사용되는 용어에 대해 간략히 설명하고, 본 발명에 대해 구체적으로 설명하기로 한다.
- [0038] 본 발명에서 사용되는 용어는 본 발명에서의 기능을 고려하면서 가능한 현재 널리 사용되는 일반적인 용어들을 선택하였으나, 이는 당 분야에 종사하는 기술자의 의도 또는 판례, 새로운 기술의 출현 등에 따라 달라질 수 있다. 따라서 본 발명에서 사용되는 용어는 단순한 용어의 명칭이 아닌, 그 용어가 가지는 의미와 본 발명의 전반에 걸친 내용을 토대로 정의되어야 한다.
- [0039] 명세서 전체에서 어떤 부분이 어떤 구성요소를 “포함” 한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성요소를 더 포함할 수 있음을 의미한다.
- [0040] 아래에서는 첨부한 도면을 참고하여 본 발명의 실시예에 대하여 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 그러나 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다.
- [0041] 본 발명에 대한 해결하고자 하는 과제, 과제의 해결 수단, 발명의 효과를 포함한 구체적인 사항들은 다음에 기재할 실시예 및 도면들에 포함되어 있다. 본 발명의 이점 및 특징, 그리고 그것들을 달성하는 방법은 첨부되는 도면과 함께 상세하게 후술되어 있는 실시예들을 참조하면 명확해질 것이다.
- [0042] 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명을 보다 상세히 설명하기로 한다.
- [0044] 본 발명인 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법은 아래 단계에 의해 수행된다.
- [0045] 제1단계(S10)는 탄탈륨산칼륨(potassium tantalum oxide, KTaO_3)와 니오브산칼륨(Potassium Niobate, KNbO_3)를 혼합하여 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 용액을 제조한다.
- [0046] 보다 구체적으로, 상기 $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 제조하는 제1단계(S10)는 아래 단계에 의해 수행된다.
- [0047] 먼저, 제1-1단계(S11)은 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate), 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide) 및 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 전구체로 준비한다.
- [0048] 상기 제1-1단계(S11)에서 아세트산 칼륨(potassium acetate)의 건조는 85 내지 95 °C 오븐에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 건조한다. 상기 건조가 85 °C 미만이거나 0.8 시간 미만인 경우 충분히 건조되지 못하여 공기 중의 수분과 반응이 발생할 수 있고, 상기 건조가 95 °C를 초과하거나 1.2 시간을 초과하는 경우 상기 아세트산 칼륨이 변형될 수 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0050] 다음으로, 제1-2단계(S12)는 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)을 첨가한 후, 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)이 모두 녹을 때까지 가열 교반 후 냉각하여 아세트산 칼륨 냉각 용액을 제조한다.
- [0051] 상기 제1-2단계(S12)에서 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)의 가열 교반은 95 내지 105 °C에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 질소 분위기 하에서 수행하며, 상기 가열 교반 후 상온에서 냉각한다.
- [0052] 여기서, 상기 아세트산 칼륨은 1.1 물을 첨가하는 것이 바람직한데, 상기 아세트산 칼륨이 휘발성이 강하므로 이를 보상하기 위해 10 mol%를 추가로 첨가한다.
- [0053] 상기 가열 교반이 95 °C 미만이거나 0.8 시간 미만인 경우 상기 아세트산 칼륨이 충분히 혼합되지 못하고, 105 °C를 초과하거나 1.2 시간을 초과하는 경우 상기 아세트산 칼륨 또는 2-메톡시에탄올이 휘발될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0054] 상기 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)을 혼합 후에는 냉각기와 질소 주입기를 연결하고 상기 가열 교반을 진행한다. 상기 가열 교반이 끝난 후에는 용액을 상온에서 냉각한다.

- [0056] 다음으로, 제1-3단계(S13)은 진공상태에서 상기 아세트산 칼륨 냉각 용액에 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가하여 가열 교반한 후 냉각하여 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조한다.
- [0057] 상기 제1-3단계(S13)에서 상기 아세트산 칼륨 냉각 용액에 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)의 가열 교반은 95 내지 105 ℃에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 질소 분위기 하에서 수행하며, 상기 가열 교반 후 상온에서 냉각한다.
- [0058] 여기서, 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)의 경우 공기 중에서 반응성이 크기 때문에 진공 상태에서 진행한다. 일반적으로는 글러브 박스(glove box)에서 진행하며 최대한 밀폐시켜 공기와 수분으로부터 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)가 반응하는 것을 억제한다. 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)을 혼합한 후 냉각기와 질소 주입기를 연결하고 가열 교반을 수행한다.
- [0059] 상기 가열 교반이 95 ℃ 미만이거나 0.8 시간 미만인 경우 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)가 충분히 혼합되지 못하고, 105 ℃를 초과하거나 1.2 시간을 초과하는 경우 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide) 또는 2-메톡시에탄올이 휘발될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0061] 다음으로, 제1-4단계(S14)는 진공상태에서 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액에 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 첨가하여 가열 교반한 후 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조한다.
- [0062] 상기 제1-4단계에서 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액에 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)의 가열 교반은 95 내지 105 ℃에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 질소 분위기 하에서 수행하며, 상기 가열 교반 후 상온에서 냉각한다.
- [0063] 여기서, 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 마찬가지로 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)도 공기 중에서 반응성이 크기 때문에 진공 상태에서 진행한다. 일반적으로는 글러브 박스(glove box)에서 진행하며 최대한 밀폐시켜 공기와 수분으로부터 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)가 반응하는 것을 억제한다. 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)을 혼합한 후 냉각기와 질소 주입기를 연결하고 가열 교반을 수행한다.
- [0064] 상기 가열 교반이 95 ℃ 미만이거나 0.8 시간 미만인 경우 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)가 충분히 혼합되지 못하고, 105 ℃를 초과하거나 1.2 시간을 초과하는 경우 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide) 또는 2-메톡시에탄올이 휘발될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0066] 다음으로, 제1-5단계(S15)는 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액에 아세틸아세톤(Acetylacetone)을 첨가하고 교반 후 에이징(aging)한다. 이후 제조된 용액은 $K(Ta,Nb)O_3$ 으로 명명한다.
- [0067] 상기 제1-4단계(S14) 이후 질소 주입기를 제거 후, 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액에 아세틸아세톤(Acetylacetone)을 소량 첨가하여 25 내지 35 분 동안 교반 수행 후, 23 내지 25 시간 동안 에이징(aging)한다. 상기 아세틸아세톤은 안정제로서 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액을 안정시킨다.
- [0068] 상기 교반이 25 분 미만인 경우 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액과 아세틸아세톤(Acetylacetone)의 혼합이 충분하지 못하고, 35 분을 초과하는 경우 효율이 낮아질 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다. 또한, 상기 에이징(aging)은 23 시간 미만으로 수행하는 경우 상기 아세틸아세톤의 안정화 효과가 미미하고, 25 시간을 초과하는 경우 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액이 변형될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0070] 다음으로, 제2단계(S20)는 KTN(potassium tantalate niobate, $K(Ta,Nb)O_3$) 박막을 제조한다.
- [0071] 보다 구체적으로, 제2-1단계(S21)는 P형 실리콘 기판을 세척 후 건조한다.

- [0072] 상기 제2-1단계(S21)에서 P형 실리콘 기판은 SiO_2 , Ti, Pt가 순서대로 적층된 것을 사용한다. 각층의 두께는 SiO_2 300 nm, Ti 10 nm 그리고 Pt 150 nm 이며, 기판은 10 mm X 10 mm 크기로 가공된다.
- [0073] 상기 P형 실리콘 기판을 세척은 트리클로로에틸렌(Trichloroethylene), 아세톤(Acetone), 에탄올(Ethanol) 및 증류수가 사용되었으며, 각각의 용액을 이용하여 초음파 세척하여 상기 기판에 존재하는 불순물을 제거한다. 이후, 200 °C의 핫플레이트 위에서 5 분간 건조한다.
- [0075] 다음으로, 제2-2단계(S22)는 상기 건조된 P형 실리콘 기판에 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 기판에 스핀 코팅한다.
- [0076] 상기 제2-2단계(S22)에서 스핀 코팅은 450 내지 550 rpm의 회전속도로 4 내지 6 초 동안 1차 코팅 후, 2,800 내지 3,200 rpm으로 25 내지 35 초 동안 2차 코팅을 수행한다.
- [0077] 상기 스핀 코팅 수행을 위해, 주사기에 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액을 옮겨 담아 증착에 사용하는데, 주사기 끝에는 Syringe filter(WhatmAn, 0.2 μm)를 장착하여 사용한다. 해당 Syringe filter는 용액 제작 및 보관 과정에서 발생한 부유물이나 불순물을 제거하기 위해서 사용된다.
- [0078] 상기 1차 스핀 코팅을 450 rpm 미만의 회전속도 또는 4 초 미만으로 수행하는 경우 스핀 코팅이 제대로 수행되지 못할 우려가 있고, 550 rpm을 초과하거나 6 초를 초과하여 수행하는 경우 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액이 상기 기판과 분리될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0079] 상기 2차 스핀 코팅을 2,800 rpm 미만의 회전속도 또는 25 초 미만으로 수행하는 경우 스핀 코팅 효과가 미미할 우려가 있고, 3,200 rpm을 초과하거나 35 초를 초과하여 수행하는 경우 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액이 상기 기판과 분리될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행하는 것이 바람직하다.
- [0081] 다음으로, 제2-3단계(S23)는 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액이 스핀 코팅된 실리콘 기판을 건조 후 열분해하여 증착한다.
- [0082] 상기 제2-2단계(S22)에서 스핀 코팅 후에 200°C의 핫플레이트에서 5분 동안 건조 후, 상기 제2-3단계(S23)에서 열분해를 수행한다.
- [0083] 보다 구체적으로, 상기 제2-3단계(S23)에서 열분해는 380 내지 420 °C의 온도에서 8 내지 12 분 동안 수행한다. 상기 열분해가 380 °C 미만의 온도 또는 8 분 미만 동안 수행하는 경우 열분해가 완전히 수행되지 못해 증착이 미미하고, 420 °C를 초과하거나 12 분을 초과하여 수행하는 경우 상기 $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 용액이 변형될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행되는 것이 바람직하다.
- [0085] 다음으로, 제2-4단계(S24)는 상기 증착 후, 로에서 소결하여 박막을 제조한다.
- [0086] 상기 제2-3단계(S23)에서 열분해를 통해 증착이 끝난 후에 공기 분위기에서 직접 삽입법을 통해 소결을 수행한다. 이후 상기 박막의 전기적 특성을 측정하기 위해 스퍼터링 기법을 통해 Pt 전극을 증착한다.
- [0087] 상기 제2-4단계(S24)에서 소결은 700 내지 800 °C의 온도에서 0.8 내지 1.2 시간 동안 수행한다. 상기 소결이 700 °C 미만으로 수행되거나 0.8 시간 미만으로 수행되는 경우 증착이 미미하여 전기적 특성 효과가 낮아질 우려가 있고, 800 °C를 초과하거나 1.2 시간을 초과하여 수행하는 경우 증착된 박막이 떨어지거나 변형될 우려가 있으므로 상기 조건으로 수행되는 것이 바람직하다.
- [0089] 또한, 본 발명인 데이터 센터 화재 방지 장치는 앞서 기재된 데이터 센터 화재 방지용 냉각 소자 제조방법에 의해 제조된 냉각 소자를 포함하는 것을 특징으로 한다.
- [0090] 보다 구체적으로, 상기 데이터 센터 화재 방지 장치는 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 포함하되, 상기 냉각 소자는 페로브스카이트 구조를 가지는 강유전체 물질인 것을 특징으로 한다. 상기 냉각 소자는, 상기 KTaO_3 와 KNbO_3 를 혼합하여 제조된 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$) 박막이다.

- [0091] 상기 KTN(potassium tantalate niobate, $K(Ta,Nb)O_3$) 박막의 평균 입자는 130 내지 150 nm 이다.
- [0092] 상기 KTN(potassium tantalate niobate, $K(Ta,Nb)O_3$) 박막의 최대 분극값은 $19.9 \mu C/cm^2$ 이다.
- [0093] 상기 KTN(potassium tantalate niobate, $K(Ta,Nb)O_3$) 박막의 최대 전기열량 계수(ΔT)는 0.62 K 이다.
- [0094] 상기 KTN(potassium tantalate niobate, $K(Ta,Nb)O_3$) 박막의 인가 전기장 대비 최대 전기열량 계수는 12.8 mK cm/kV 이다.
- [0095] 상기 KTN(potassium tantalate niobate, $K(Ta,Nb)O_3$) 박막은 기판에 탄탈륨산칼륨(potassium tantalum oxide, $KTaO_3$)과 니오브산칼륨(Potassium Niobate, $KNbO_3$)을 70:30 몰 비율(mol ratio)로 혼합한 용액인 KTN(70/30)과 55:45 몰 비율(mol ratio)로 혼합한 용액인 KTN(55/45) 용액을 한 층마다 번갈아 가며 6 회(layers) 코팅한 것이다.
- [0097] 여기서, 상기 강유전체는 도 1에 나타난 바와 같이, 일반적으로 32개의 점군으로 분류되는 세라믹의 결정될 수 있다. 이 중 21개의 점군은 비대칭성(non-centrosymmetric)을 지닌다. 이 중에서 20개의 점군은 격자의 비대칭성에 의해 쌍극자 모멘트가 발생하여 압전성을 가지게 된다. 이 중 10개의 점군은 외부로부터 다른 힘이 작용하지 않더라도 영구쌍극자 모멘트를 가지게 된다. 그 결과 자발 분극(Spontaneous polarization)이 발생하고, 이러한 물질들은 초전성(Pyroelectricity)을 지닌다고 한다. 이 중에서도 외부 전기장의 변화에 따라 쌍극자들의 방향이 자유롭게 변환될 수 있는 물질들은 강유전성(Ferroelectricity)을 지닌다고 한다. 강유전체는 큐리 온도(Curie temperature)에서 상전이가 발생한다. 큐리 온도 이상에서는 상유전성을 나타내지만 큐리 온도 이하에서는 자발분극을 가지며 강유전성을 나타내게 된다.
- [0098] 강유전성의 대표적인 특성으로 도 2와 같은 이력 곡선(Hysteresis loop)이 있다. 이는 외부 전기장에 따른 분극값을 나타낸 것으로 P-E(Polarization-Electric field) 이력 곡선이라고도 한다. 외부 전기장이 가해지지 않은 최초의 상태에서는 쌍극자들이 무질서하게 배열되어 있다. 이 때, 전기장을 인가해주면 쌍극자들이 배열되면서 분극 값이 증가하게 된다. 한편, 인가 전기장의 세기를 증가시키더라도 더 이상 분극 값이 증가하지 않는 지점이 있는데, 이를 포화 분극(Saturation polarization)이라고 한다. 이 때, 외부 전기장을 제거하면 분극이 완전히 사라지지 않고, 자발 분극에 의해서 일정 수준의 분극 값을 가지게 되는데, 이를 잔류 분극(Remanent polarization)이라고 한다. 강유전체에서 분극 값을 0으로 만들기 위해서는 외부 전기장이 인가되어야 하며, 이를 항전계(Coercive field)라고 한다.
- [0100] 본 발명에 의해 제조된 상기 $K(Ta,Nb)O_3$ 는 아래와 같은 특성을 나타낸다.
- [0101] 상기 $K(Ta,Nb)O_3$ 는 $KTaO_3$ 와 $KNbO_3$ 를 혼합하여 만든 고용체로, 도 3과 같이 페로브스카이트 구조를 가지는 대표적인 강유전체 물질이다. 이는 큐리 온도 이하에서 tetragonal 구조로 상전이가 발생한다. 이 때, 자발 분극 값은 크게 변화하게 된다. 한편, KTN은 화학 조성에 따라서 큐리 온도가 넓은 범위에 걸쳐서 변화한다. 도 4를 참고하여, KTN의 큐리 온도가 상온 부근에서 나오게끔 조절을 한다면 상온에서 자발 분극 값이 크게 변화를 하게 되고, 뛰어난 전기 열량 효과를 가질 것으로 기대할 수 있다.
- [0103] 앞서 설명한 강유전체의 유전 특성은 아래와 같다.
- [0104] 도 5와 같이 진공에서 평행한 두 전극이 있을 때, 해당 정전 용량을 C_0 라고 한다. 이는 전극의 면적에 비례하고, 전극 사이의 거리에 반비례한다. 이를 식으로 정리하면 식 (2-1)로 나타낼 수 있는데, 이 때, ϵ_0 는 $8.854 \cdot 10^{-12}$ [F/m]의 값을 가지는 상수이다. 해당 상수는 진공에서의 유전율이라고도 한다. 한편, 유전체의 정전 용량을 C라 하고, 유전체의 유전율을 ϵ 라고 하면 식 (2-2)와 같이 정의할 수 있다. 이 때, 유전체의 유전율을 진공에서의 유전율로 나눈 값을 ϵ_r 로 정의하고, 이를 상대 유전율이라고 한다. 이를 식으로 정리하면 식 (2-3)으로 나타낼 수 있는데, 식 (2-2)를 식 (2-3)에 대입하여 정리하면 식 (2-4)와 같이 정의할 수 있다. 한편, 상대 유전율은 유전 상수라고도 한다. 유전 상수가 큰 물질은 강유전성이 뛰어나다는 것으로 예상할 수 있는데,

이는 전기 열량 효과가 크게 나타날 것이라 간접적으로 예상할 수 있다.

[0106] $C_0 = \epsilon_0 \cdot A/d \cdots (2-1)$

[0107] $C = \epsilon \cdot A/d \cdots (2-2)$

[0108] $\epsilon_r = \epsilon / \epsilon_0 \cdots (2-3)$

[0109] $\epsilon_r = C \cdot d / \epsilon \cdot A \cdots (2-4)$

[0110] (여기서, C_0 : 정전 용량, ϵ_0 : $8.854 \cdot 10^{-12}$ [F/m], C : 유전체의 정전 용량, ϵ : 유전체의 유전율, d : 시편 두께)

[0112] 또한, 상기 전기 열량 효과는 강유전체 물질이 단열상태 내에서 외부 전계에 의하여 결정 내부의 쌍극자들이 회전하여 물질의 엔트로피가 변화하는 것을 말한다. 도 6은 전기 열량 효과의 원리에 대해서 정리한 것이다. (a)는 전계가 가해지지 않은 최초의 상태이며, 쌍극자들이 무질서하게 배열되어 있는 상태이다. 이 때, 외부에서 전계를 인가해주면 (b)와 같이 쌍극자들이 전계 방향에 따라서 정렬이 된다. 쌍극자들이 정렬됨에 따라서 쌍극자에 의한 엔트로피는 감소하는데, 물질 전체의 에너지를 일정하게 유지하기 위해서 격자진동이 발생하고 온도가 증가하게 된다. 일정 시간이 흘러 외부와의 열평형을 이루면서 (c)와 같은 상태가 된다. 이 때, 외부 전계를 제거하면 다시 쌍극자들이 무질서하게 배열되고, (b)와는 반대로 쌍극자 엔트로피는 증가, 온도는 감소하면서 (d)와 같은 상태가 된다. 다음과 같이 ΔT 만큼 온도가 감소하는 것을 확인할 수 있는데, 이것을 전기 열량 계수라고 한다. 해당 (a) - (d) 과정을 전기 열량 효과의 냉각효과라고 하며, 이러한 원리를 냉각소자에 응용할 수 있다.

[0113] 전기 열량 계수는 전계의 변화에 따른 엔트로피 변화를 이용하여 계산해야 하지만, 이를 측정하는 것은 어렵기 때문에 간접적인 계산을 통해서 유도해야 한다. 식 (2-5)는 맥스웰 관계식을 통해서 얻어진 식으로, 전계의 변화에 따른 엔트로피 변화의 비는 온도 변화의 따른 분극의 변화와 같다는 것을 이용한 것이다. 식 (2-5)를 이용하여 전기 열량 계수 구하는 식을 정리하면 식 (2-6)과 같이 정리된다. 식 (2-6)에서 C 는 물질의 비열, ρ 는 이론 밀도이다. 해당 식을 이용하여 전기 열량 계수를 계산하기 위해서 온도에 따른 P-E 이력 곡선을 측정하였다.

[0115] $(\delta S / \delta E) \cdot T = (\delta P / \delta T) \cdot E \cdots (2-5)$

[0116]
$$\Delta T = - \int_{E_1}^{E_2} \frac{T}{C\rho} \left(\frac{\delta P}{\delta T} \right) dE \cdots (2-6)$$

[0117] (여기서, C : 물질의 비열, ρ 는 이론 밀도, $(\delta S / \delta E) \cdot T$ 는 온도가 일정한 조건에서 인가전계에 대한 엔트로피 변화량, $(\delta P / \delta T) \cdot E$ 는 전계가 일정한 조건에서 온도에 대한 분극의 변화량)

[0119] 이하, 기존의 방법으로 제조된 비교예와 실시예를 비교하고 실험예를 통하여 본 발명을 보다 상세하게 설명한다. 본 발명의 목적, 특징, 장점은 이하의 실시예를 통하여 쉽게 이해될 것이다. 본 발명은 여기서 설명하는 실시예에 한정되지 않고, 다른 형태로 구체화될 수도 있다. 여기서 소개되는 실시예는 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 본 발명의 사상이 충분히 전달될 수 있도록 하기 위해 제공되는 것이다. 따라서 이하의 실시예에 의해 본 발명이 제한되어서는 안 된다.

[0121] 이하, 기존의 방법으로 제조된 비교예와 실시예를 비교하고 실험예를 통하여 본 발명을 보다 상세하게 설명한다. 본 발명의 목적, 특징, 장점은 이하의 실시예를 통하여 쉽게 이해될 것이다. 본 발명은 여기서 설명하는 실시예에 한정되지 않고, 다른 형태로 구체화될 수도 있다. 여기서 소개되는 실시예는 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 본 발명의 사상이 충분히 전달될 수 있도록 하기 위해 제공되는 것이

다. 따라서 이하의 실시예에 의해 본 발명이 제한되어서는 안 된다.

실시예 1 : $K(Ta,Nb)O_3$ 용액 제조

기본적으로 실험에 사용된 용액들은 졸-겔법을 통하여 제작되었다. 전구체로는 각각 Potassium acetate(SIGMA-ALDRICH, 99.0 %), Tantalum(V) ethoxide(Alfa Aesar, 99.999%) 그리고 Niobium(V) ethoxide(Alfa Aesar, 99.999 %)가 사용되었으며, 용매로는 2-Methoxyethanol(Alfa Aesar, 99 %)가 사용되었다. 표 2에서 Potassium acetate의 몰 수를 보면 1.1 몰이 첨가된 것을 알 수 있는데, 이는 Potassium이 휘발성이 강하기 때문에 이를 보상하고자 10 mol% 더 가하였다. 또한, Potassium acetate는 공기 중의 수분과 반응성이 크기 때문에 용액을 제작하기에 앞서 건조하였다. 건조는 90 °C로 맞춰진 오븐에서 1 시간 동안 진행하였다. 건조 후에 용매인 2-Methoxyethanol를 첨가해준 후 Potassium acetate가 모두 녹을 때까지 교반하였다. 교반이 끝난 후에는 3-necks 플라스크에 용액을 옮겨 담은 후 냉각기와 질소 주입기를 연결하고, 가열 및 교반을 진행하였다. 교반은 한 시간 동안 진행되었으며, 100 °C까지 가열하였다. 교반이 끝난 후에는 용액을 상온에서 냉각하였다.

이후에 Tantalum ethoxide와 2-Methoxyethanol을 첨가하였다. Tantalum ethoxide의 경우 공기 중에서 반응성이 크기 때문에 해당 시약을 첨가할 때는 진공 상태에서 진행하였다. 그러기 위해서 용액 제작을 glove box에서 진행하였으며, 최대한 밀폐시켜 공기와 수분으로부터 Tantalum ethoxide가 반응하는 것을 억제하였다. Tantalum ethoxide와 2-Methoxyethanol을 첨가 후 냉각기와 질소 주입기를 연결하고, 가열 및 교반을 진행하였다. 교반은 한 시간 동안 진행되었으며, 100 °C까지 가열하였다. 동일하게 교반이 끝난 후에는 용액을 상온에서 냉각하였다.

이후에 Niobium ethoxide와 2-Methoxyethanol을 첨가하였다. Tantalum ethoxide와 마찬가지로 Niobium ethoxide 역시 공기 중에서 반응성이 크기 때문에 glove box 내에서 실험을 진행하였다. 이후에 냉각기와 질소 주입기를 연결하고, 가열 및 교반을 진행하였다. 동일하게 교반은 한 시간 동안 진행되었으며, 100 °C까지 가열하였다. 이후에 80 °C에서 12 시간 동안 교반하였다.

이후에 질소 주입기를 제거 후 Acetylacetone(SIGMA-ALDRICH, 99 %)를 소량 첨가하여 30 분간 교반만 진행하였다. 해당 Acetylacetone은 안정제로서의 역할을 한다. 완성된 용액은 코니칼 튜브에 4 ml씩 옮겨 담은 후 저온에서 24 시간 동안 aging 과정을 진행하였다.

아래 표 1은 탄탈산 칼륨 니오베이트 용액의 전구체의 종류 및 순도를 나타내었고, 표 2는 $K(Ta,Nb)O_3$ 용액 제조를 위한 혼합 비율을 나타내었다.

[표 1]

Starting materials	Manufacturer	Purity
Potassium acetate	SIGMA-ALDRICH	99 %
Tantalum ethoxide	Alfa Aesar	99.999 %
Niobium ethoxide	Alfa Aesar	99.999 %
2-Methoxyethanol	Alfa Aesar	99 %
Acetylacetone	SIGMA-ALDRICH	99 %

[0133] [표 2]

Materials	Atomic weight (g/mol)	Mole ratio	Moles	1/Purity	Amount (g)
Potassium acetate	98.14	1.1	0.03	1.01	3.27
2-Methoxyethanol	76.09				40ml
Tantalum(V) ethoxide	406.25	0.7	0.03	1.00001	8.53
2-Methoxyethanol	76.09				30ml
Niobium ethoxide	318.21	0.3	0.03	1.00001	2.86
2-Methoxyethanol	76.09				30ml

Materials	Atomic weight (g/mol)	Mole ratio	Moles	1/Purity	Amount (g)
Potassium acetate	98.14	1.1	0.03	1.01	3.27
2-Methoxyethanol	76.09				40ml
Tantalum(V) ethoxide	406.25	0.55	0.03	1.00001	6.70
2-Methoxyethanol	76.09				30ml
Niobium ethoxide	318.21	0.45	0.03	1.00001	4.30
2-Methoxyethanol	76.09				30ml

[0134]

[0136] **실시예 2 : $K(Ta,Nb)O_3$ 박막 제조**

[0137] 본 연구에서는 박막 시편을 제작하여, 해당 시편의 특성을 측정하고 전기열량 효과에 대한 결과를 고찰하였다. 실험에 사용된 기판은 SiO_2 , Ti, Pt가 순서대로 적층된 P형 실리콘 기판이 사용되었다. 각층의 두께는 SiO_2 300 nm, Ti 10 nm 그리고 Pt 150 nm이며, 기판은 10 mm X 10 mm 크기로 가공하였다. 박막을 증착하기 이전에 기판 세척하였다. 세척에는 Trichloroethylene, Acetone, Ethanol 그리고 증류수가 사용되었으며, 각각의 용액을 이용하여 초음파 세척하였다. 해당 과정을 통해서 기판에 존재하는 불순물을 제거하였다. 이후에 200 °C의 핫플레이트 위에서 5 분간 건조하였다.

[0138] 한편, 박막 증착에는 스핀 코팅법이 이용되었다. 주사기에 용액을 옮겨 담아 증착에 사용하였는데, 주사기 끝에는 Syringe filter(Whatman, 0.2 μm)를 장착하여 사용하였다. 해당 Syringe filter는 용액 제작 및 보관 과정에서 발생한 부유물이나 불순물을 제거하기 위해서 사용되었다. 코팅은 500 rpm의 회전속도로 5 초간 저속 코팅 후, 3000 rpm으로 30 초간 고속 코팅을 진행하였다. 스핀 코팅 후에 200 °C의 핫플레이트에서 5 분간 건조, 400 °C의 핫플레이트에서 10 분간 열분해를 해주었다. 박막은 총 5 개의 종류가 제작되었는데, 각각 KTN(70/30), KTN(55/45)을 6 회 코팅하여 만든 monolayered thin films 그리고 두 가지 용액을 한 층마다 번갈아 가며 총 4, 5, 6 회(layers) 코팅한 heterolayered thin films이 있다. 증착이 끝난 후에 750 °C의 로에서 1 시간 동안 소결을 진행하였다. 소결은 공기 분위기에서 진행되었으며, 직접 삽입법을 이용하였다. 마지막으로 완성된 박막의 전기적 특성을 측정하기 위해서 스퍼터링 기법을 통해서 Pt 전극을 증착하였다.

[0140] **실험예 1 : 구조적 특성 분석**

[0141] **1-1 : XRD(X-ray Diffraction)**

[0142] $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 결정성 물질의 종류와 그 양을 분석하고, 격자 상수와 같은 추가적인 정보를 얻기 위해서 진행되었다. 또한, 이차상 생성 여부를 확인하고자 XRD(Bruker, D8 Advance A25 Plus) 분석을 진행하였다. 튜브의 전압과 전류는 각각 40 kV, 40 mA이며, $\lambda=1.5418 \text{ \AA}$ 인 $CuK\alpha$ 를 이용하였다. 2θ 범위는 $20 - 60^\circ$, Increment는 0.04 그리고 Time/Step은 2.0으로 측정하였다.

[0143] 도 7은 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 X-선 회절 분석 결과이다. 모든 조건에서 이차상(Pyrochlore phase)이 발견되었다. 이는 박막 제작 과정에서 기판 표면에 존재하는 작은 부유물들과 외부로부터 발생한 불순물들이 seed 역할을 하며 다른 상이 성장된 것으로 사료된다. 한편, 코팅 횟수가 증가할수록 박막의 결정성이 증가하며 페로브스카이트 단일상 회절 피크 대비 이차상 회절 피크의 크기가 감소하는 것을 확인할 수 있었다. 회절 피크의 세기를 이용하여 격자 상수 및 intensity ratio를 계산하였을 때, 4 회 코팅한 이중층 박막의 intensity ratio는 0.158 였지만 코팅 횟수가 증가함에 따라서 0.089 까지 감소하는 것을 확인하였다. 격자 상수는 모든 시편에서 약 0.398 nm로 큰 변화를 보이지 않았다.

[0145] **1-2 : FE-SEM(Field Emission Scanning Electron Microscope)**

[0146] $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 표면, 단면 이미지와 입자크기를 분석하기 위해서 FE-SEM(JEOL, JSM-6380LV) 분석을 진행하였다. 측정을 위해서 박막 시편을 3 mm X 3 mm 크기로 잘게 잘랐으며, 이온 스퍼터링 장비를 이용하여 표면과 단면에 Pt 코팅을 120 초간 진행하였다. SEI mode를 이용하였고, 인가 전압은 5 kV, 측정 배율은 30,000배로 측정하였다.

[0147] 도 8, 9는 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 표면 및 단면의 미세구조를 나타낸 것이다. 도 8의 (a) - (e)에서 모두 균일한 구조를 보였으며, 평균 입자 크기는 코팅 횟수와 관계없이 약 130-150 nm로 거의 일정하였다. 도 8의 (e)에서 형태가 다른 입자가 관찰 되었는데, 이는 박막 제작 과정에서 이차상이 형성되며 관찰된 것으로 사료된다. 한편, 도 9의 (a) - (c)에서 코팅 횟수가 증가함에 따라서 박막의 두께는 276.9 nm에서 423 nm까지 증가하였다. 도 9의 (c) - (e)를 비교하였을 때, 이중층과 단일층의 차이는 크게 나타나지 않았으며, 1회 코팅 시 박막의 두께는 평균적으로 약 70 nm 증가하는 것을 확인하였다.

[0149] **1-3 : TEM, EDS**

[0150] $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 각 층에서의 조성과 계면에서의 조성 변화를 분석하기 위해서 TEM(FEI, Titan Themis Z), EDS(OXFORD, SuperX) 분석을 진행하였다. 측정에는 6회 코팅한 이중층 박막이 사용되었다. 해당 분석을 진행하기 전 집속 이온빔(ThermoFisher, Helios G4)을 이용하여 전처리를 하였으며, 샘플링은 Cu grid 위에서 진행되었다.

[0151] 도 10은 $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 투과 전자 현미경 분석과 에너지 분산 분광법 분석 결과이다. 해당 분석에 사용된 시편은 6 층 적층한 이중층 박막이다. 박막 제작에 사용된 용액이 모두 $K(Ta,Nb)O_3$ 용액이었기에 TEM 도에서 층상 구조는 명확히 확인되지 않았다. 또한, 검게 표현된 부분과 회색 표현된 부분이 존재하는 것을 확인할 수 있는데, 이것은 상온에서 tetragonal 구조를 가지는 이중층 박막의 특성상 각 결정들의 방향이 다르기 때문에 다음과 같이 표현될 수 있다. EDS는 박막의 투과 깊이에 따른 해당 원소들의 intensity를 분석하였다. 투과 깊이가 깊어질수록 피크가 안정되는 것을 확인할 수 있다. 끝 지점에서는 실리콘 기판과 상호 확산이 발생하면서 피크가 비교적 불안정한 것을 확인할 수 있다.

[0153] **실험예 2 : 전기적 특성**

[0154] **2-1 : 유전특성 측정**

[0155] $K(Ta,Nb)O_3$ 박막의 유전특성을 측정하기 위하여 LCR meter(FLUKE, PM-6306)을 이용하였다. 해당 장비를 통해서 온도 및 주파수 변화에 따른 정전 용량 및 유전 손실을 측정하였다. 측정 온도는 -8°C 에서 60°C 까지 변화시켰으며, 주파수는 100 Hz부터 1 MHz까지 변화시켰다. 측정한 값을 식 (2-4)에 대입하여 유전상수(상대 유전율)을

계산하였다. 유전 상수를 비교함으로써 전기열량 특성을 간접적으로 예측하였다.

[0156] 도 11은 $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 온도에 따른 유전상수 및 유전손실을 나타낸 것이다. 도 11의 (a)에서 유전상수는 상유전상을 가질 때는 비교적 낮은 값을 가지지만, 강유전상으로 바뀌는 지점부터는 높은 값을 가졌다. 이중층 박막끼리 비교하였을 때, 코팅 횟수가 증가함에 따라서 유전상수가 크게 증가하는 것을 증가하였다. 이는 결정성이 증가하고, 식 (2-4)를 통하여 박막의 두께가 증가함에 따른 것으로 사료된다. 한편, 이중층 박막과 단일층 박막을 비교하였을 때는 이중층 박막이 비교적 높은 값을 가지는 것을 확인할 수 있다. 측정 온도 범위가 $-8 \sim 60^\circ\text{C}$ 인데, KTN phase diagram에서 KTN(70/30)과 KTN(55/45)는 각각 -50°C 와 130°C 의 상전이 온도를 가지기 때문에 비교적 작은 유전상수를 가진다고 생각할 수 있다. 유전손실은 모든 시편에서 온도가 증가할수록 증가하는 경향성을 보였다.

[0158] 도 12는 $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 주파수에 따른 유전상수 및 유전손실을 나타낸 것이다. 도 12의 (a)에서 이중층 박막끼리 비교하였을 때, 코팅 횟수가 증가함에 따라서 유전상수가 크게 증가하는 것을 증가하였다. 도 11에서와 마찬가지로 이중층 박막과 단일층 박막을 비교하였을 때는 이중층 박막이 비교적 높은 값을 가지는 것을 확인할 수 있다. 이는 이중층 박막의 경우 측정 온도 구간에서 상전이가 발생하여 다음과 같이 확인되는 것으로 사료된다. 유전손실은 모든 시편에서 주파수가 증가할수록 크게 증가하였고, 시편끼리 큰 차이를 보이지 않았다. 고주파수 영역에서는 내부 전하 충돌이 증가하여 열적 에너지가 상승하게 되고, 열적 손실이 증가하게 된다. 그 결과 인가 주파수가 증가함에 따라서 유전상수가 감소하고, 유전손실이 증가한 것으로 사료된다.

[0160] 2-2 : P-E 이력 곡선 측정

[0161] $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 분극 특성을 측정하기 위하여 Ferroelectric tester(Radiant Technologies, RT-66B)를 통하여 온도 변화에 따른 P-E 이력 곡선을 측정하였다. 온도는 -8°C 에서 60°C 까지 변화시켰으며, 측정한 값을 통해 잔류 분극 및 항전계까지 계산하였다.

[0162] 도 13은 $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 온도에 따른 P-E 이력 곡선을 나타낸 것이다. 모든 시편은 동일하게 전압을 10 V까지 증가시키며 측정이 진행되었다. 미세구조 분석을 통해서 얻어진 박막의 두께를 이용하여 각 시편에 인가되는 전계 값을 계산하였다. 유전 특성과 비슷하게 분극 값의 최댓값은 6회 코팅한 이중층 박막에서 관찰되었으며, 그 최댓값은 약 $19.9 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 였다.

[0163] 도 14는 $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 온도에 따른 분극 값을 나타낸 것이다. 각 시편의 대소 비교를 위하여 30, 70, 100, 150 kV/cm의 전기장이 인가되었을 때의 분극 값으로 정리하였다. (a) - (e)에서 동일하게 온도가 감소함에 따라서 분극 값이 크게 증가하는 구간이 발견되었는데, 이는 상유전성을 가지는 cubic 구조에서 강유전성을 가지는 tetragonal 구조로 변하면서 나타난 것이다. 그리고 해당 온도를 큐리 온도라 명한다. 측정 온도 구간에서 평균적으로 가장 큰 분극 값을 나타낸 시편은 6회 코팅한 이중층 박막 시편이며, 해당 시편의 분극 값의 최댓값은 약 $19.9 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 였다.

[0164] 도 15는 $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 잔류 분극 및 항전계 값을 나타낸 것이다. 측정은 상온에서 진행되었으며, 해당 온도에서 상유전상으로 존재하는 KTN(70/30)의 경우 잔류분극 및 항전계 값이 존재하지 않기 때문에 측정 결과에서 제외하였다. 코팅 횟수에 따른 결과를 비교하였을 때, 코팅 횟수가 증가할수록 잔류 분극이 커지고, 항전계 값이 작아지는 것을 확인하였다. 또한, 이중층 박막과 단일층 박막의 결과를 비교하였을 때, 이중층 박막의 잔류분극이 더 크고, 항전계 값이 작은 것으로 확인하였다. 이는 분극 가능한 축이 많이 존재할수록 분극 효율이 가장 뛰어나 잔류 분극이 증가하는 것과 이중층 박막에 존재하는 계면들이 분극 switching을 용이하게 하여 항전계 값을 감소하게 만든 것으로 사료된다.

[0166] 2-3 : 전기열량 특성

[0167] $K(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 온도에 따른 P-E 이력 곡선 측정 값을 이용하여 전기열량 계수인 ΔT 를 식 (2-6)을 통해서 간접적으로 계산하였다. 식 (2-6)에서 C는 물질의 비열, ρ 는 이론 밀도이다. 얻어진 전기열량 계수를 인가 전계 값으로 나눔으로써 전기열량 효율을 계산하였다.

- [0168] 도 16은 $K(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 전기열량 계수인 ΔT 값을 나타낸 것이다. 전기열량 계수는 맥스웰 관계식을 통하여 간접적으로 계산할 수 있다. ΔT 는 온도 변화에 따른 분극 값의 변화가 커질수록 그 값이 증가하는데, (a) - (c)에서 코팅 횟수가 증가할수록 ΔT 가 커지는 경향성을 확인할 수 있다. 6회 코팅한 이중층 박막의 경우 40.7 °C에서 ΔT 가 1.93 K로 확인되었다. (c) - (e)를 비교하면, KTN(55/45) 단일층 박막의 ΔT 의 최댓값이 2.12 K로 가장 크게 나타났지만, 해당 값이 측정된 온도가 60 °C로 너무 높기 때문에 실온에서의 실용성은 다소 떨어지는 것으로 확인되었다. 상온에서의 결과를 보면, 6 회 코팅한 이중층 박막의 ΔT 값이 약 0.62 K로 가장 큰 것으로 확인되었다.
- [0169] 도 17은 $K(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 박막의 전기열량 효율을 나타낸 것이다. 해당 값은 인가 전기장 대비 전기열량 계수의 크기를 나타낸 것으로 전기열량 소자로서 그 효율을 알 수 있는 수치이다. ΔT 값과 마찬가지로 코팅 횟수가 증가할수록 효율이 좋아지는 것을 확인하였고, KTN(55/45) 단일층 박막이 14.1 mKcm/kV로 그 값은 가장 컸지만, 해당 값이 나타난 온도가 60 °C로 너무 높았기 때문에 실온에서의 실용성은 떨어지는 것으로 확인되었다. 전기열량 효율의 크기나 측정 온도로 보았을 때, 가장 효율적인 특성을 보이는 것은 6 회 코팅한 이중층 박막으로 간주되었고, 해당 값은 40.7 °C에서 약 12.8 mKcm/kV로 확인되었다.
- [0171] 상기 과제의 해결 수단에 의해, 본 발명은 본 발명은 납을 사용하지 않으면서 뛰어난 특성을 가질 것으로 예상되는 물질의 박막을 제조하여 이를 통해 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자로서, 컴퓨터 반도체 보드에 상기 전기열량 효과를 나타내는 냉각 소자를 부착시켜 전력반도체에서 발생하는 열을 강제로 냉각시킨다.
- [0172] 일반적인 기술로 전기열량 효과는 약 200 °C 부근에서 냉각 효과를 나타내나, 본 발명에서 제조된 소재를 이용할 경우 실온 부근 (20 ~ 60 °C)에서 냉각 효과를 나타낼 수 있다.
- [0174] 이와 같이, 상술한 본 발명의 기술적 구성은 본 발명이 속하는 기술분야의 당업자가 본 발명의 그 기술적 사상이나 필수적 특징을 변경하지 않고서 다른 구체적인 형태로 실시될 수 있다는 것을 이해할 수 있을 것이다.
- [0175] 그러므로 이상에서 기술한 실시예들은 모든 면에서 예시적인 것이며 한정적인 것이 아닌 것으로서 이해되어야 하고, 본 발명의 범위는 상기 상세한 설명보다는 후술하는 특허청구범위에 의하여 나타나며, 특허청구범위의 의미 및 범위 그리고 그 등가 개념으로부터 도출되는 모든 변경 또는 변형된 형태가 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 한다.

부호의 설명

- [0177] S10. KTaO_3 와 KNbO_3 를 혼합하여 KTN(potassium tantalate niobate, $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$) 용액을 제조하는 제1단계
- S11. 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate), 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide) 및 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 전구체로 준비하는 제1-1단계
- S12. 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)에 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가한 후, 상기 건조된 아세트산 칼륨(potassium acetate)이 모두 녹을 때까지 가열 교반 후 냉각하여 아세트산 칼륨 냉각 용액을 제조하는 제1-2단계
- S13. 진공상태에서 상기 아세트산 칼륨 냉각 용액에 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드(tantalum(V) ethoxide)와 2-메톡시에탄올(2-Methoxyethanol)를 첨가하여 가열 교반한 후 냉각하여 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조하는 제1-3단계
- S14. 진공상태에서 상기 탄탈륨(V) 에톡사이드 혼합 용액에 상기 니오빈(V) 에톡사이드(niobium(V) ethoxide)를 첨가하여 가열 교반한 후 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액을 제조하는 제1-4단계
- S15. 상기 니오빈(V) 에톡사이드 혼합 용액에 아세틸아세톤(Acetylacetone)을 첨가하고 교반 후 에이징(aging)하는 제1-5단계
- S20. $\text{K}(\text{Ta}, \text{Nb})\text{O}_3$ 박막을 제조하는 제2단계

S21. P형 실리콘 기판을 세척 후 건조하는 제2-1단계

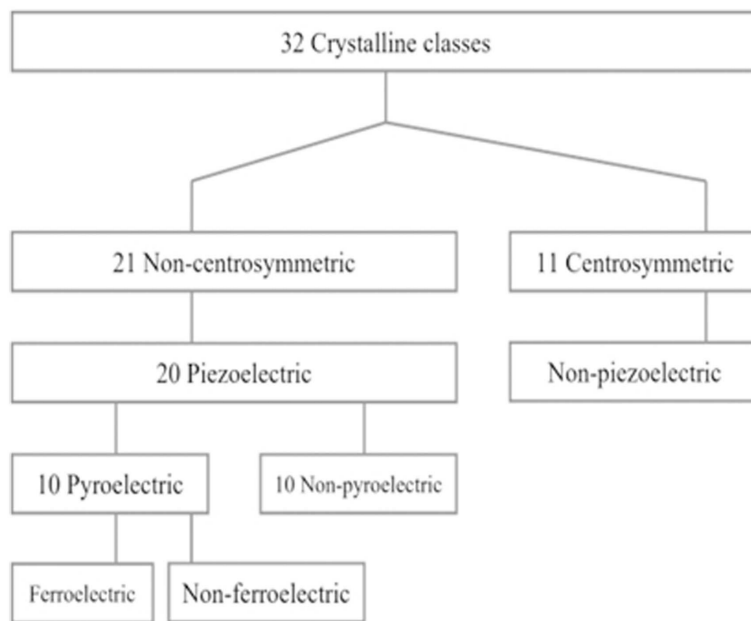
S22. 상기 건조된 P형 실리콘 기판에 상기 $K(Ta,Nb)O_3$ 용액을 기판에 스핀 코팅하는 제2-2단계

S23. 상기 $K(Ta,Nb)O_3$ 용액이 스핀 코팅된 실리콘 기판을 건조 후 열분해하여 증착하는 제2-3단계

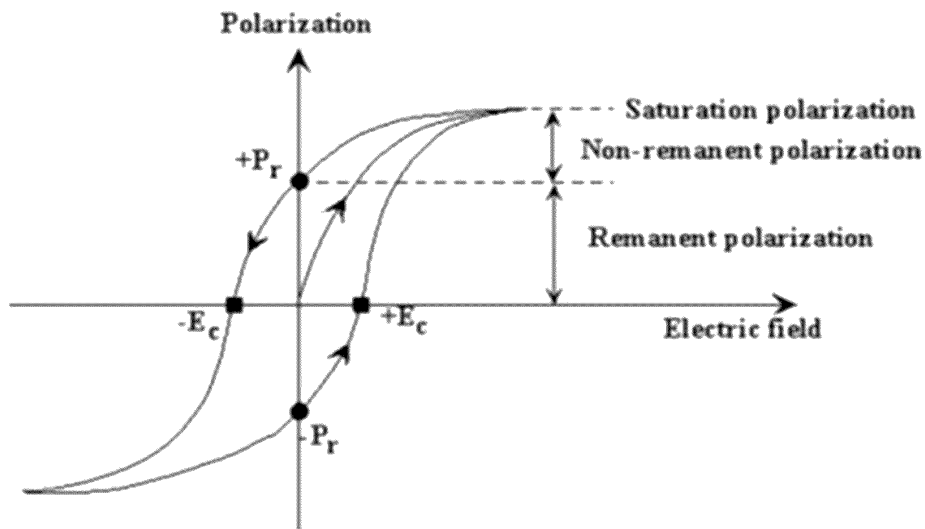
S24. 상기 증착 후, 로에서 소결하여 박막을 제조하는 제2-4단계

도면

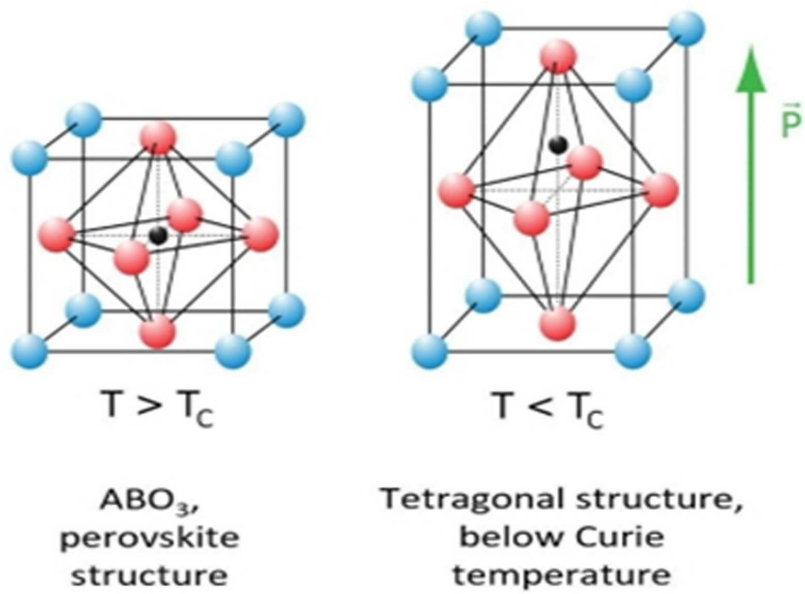
도면1



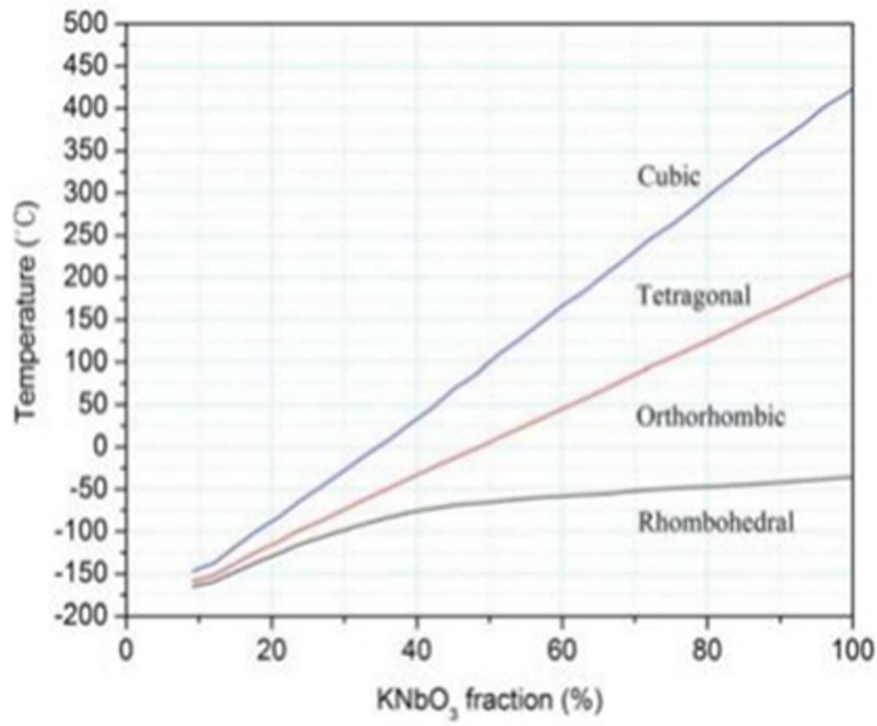
도면2



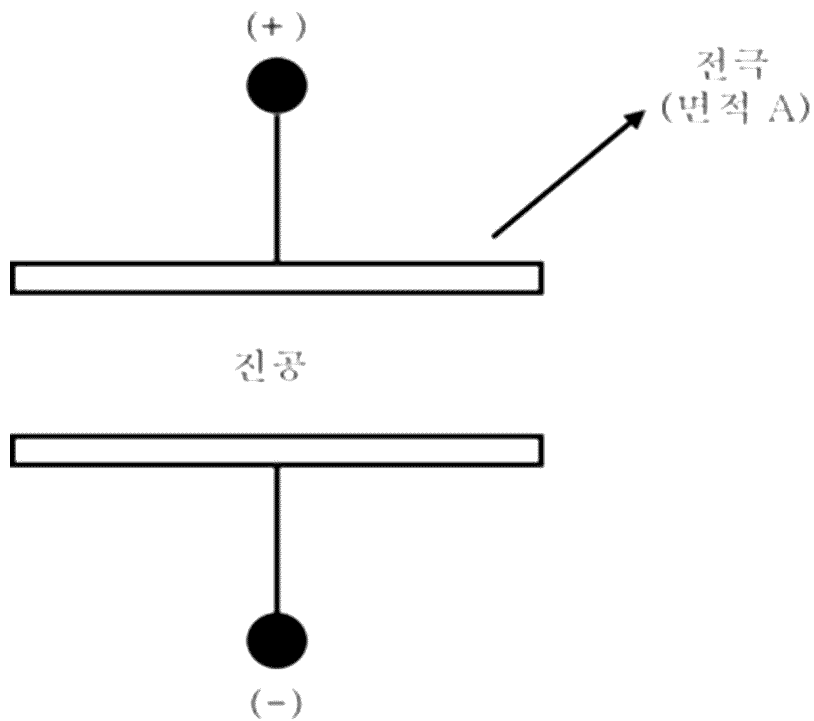
도면3



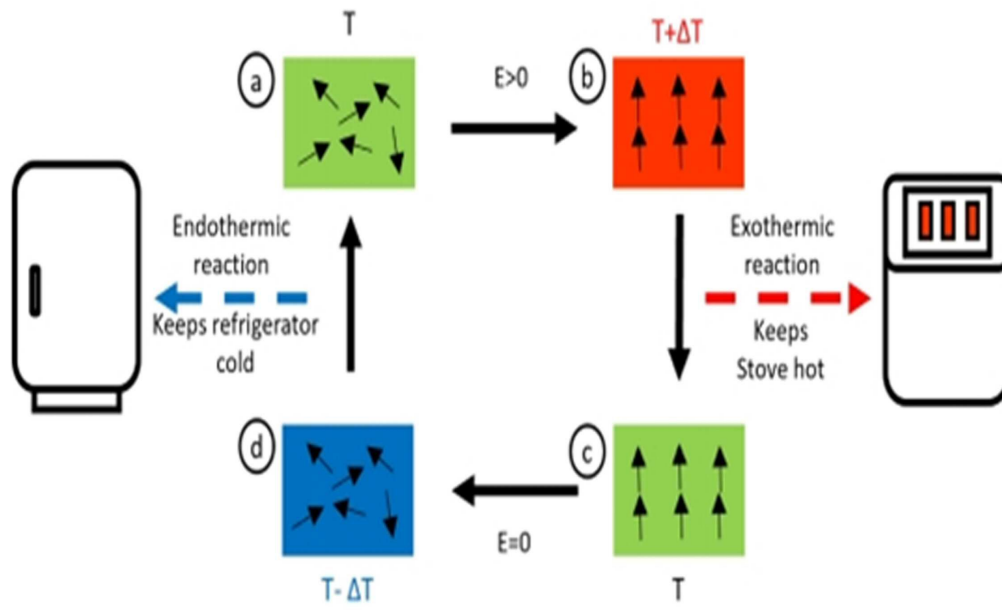
도면4



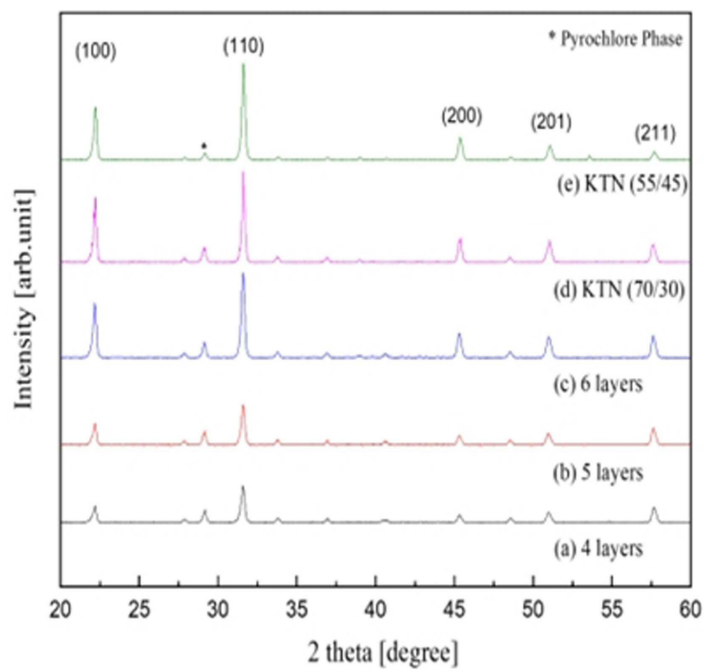
도면5



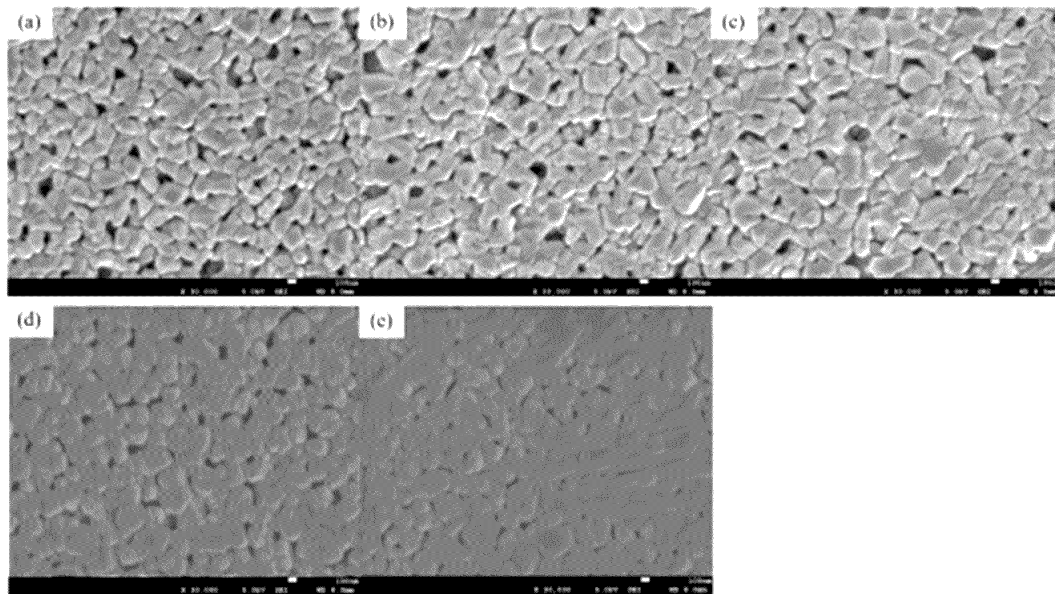
도면6



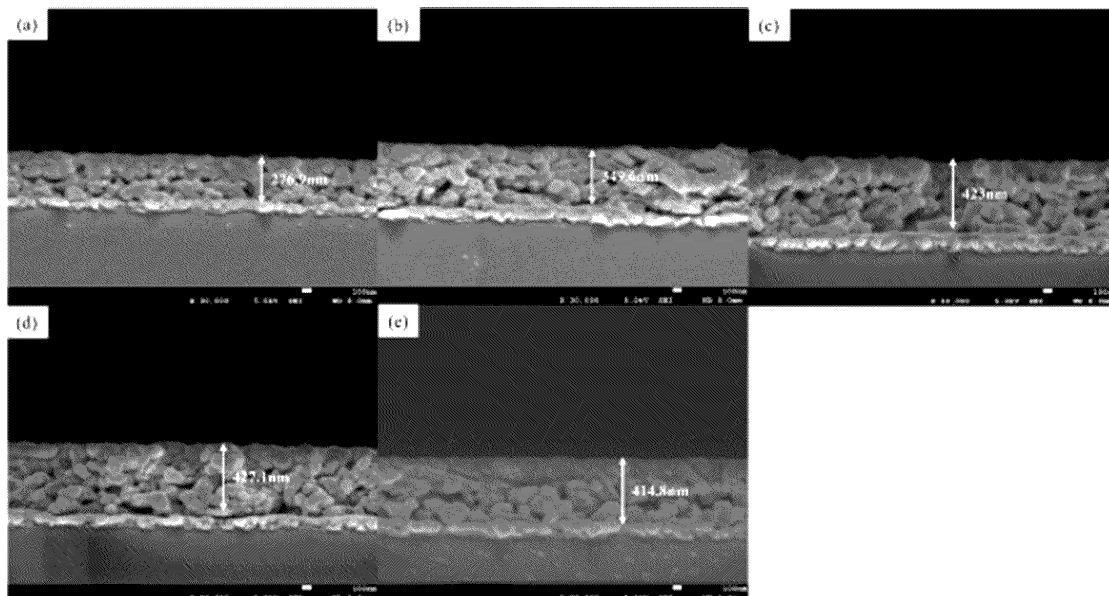
도면7



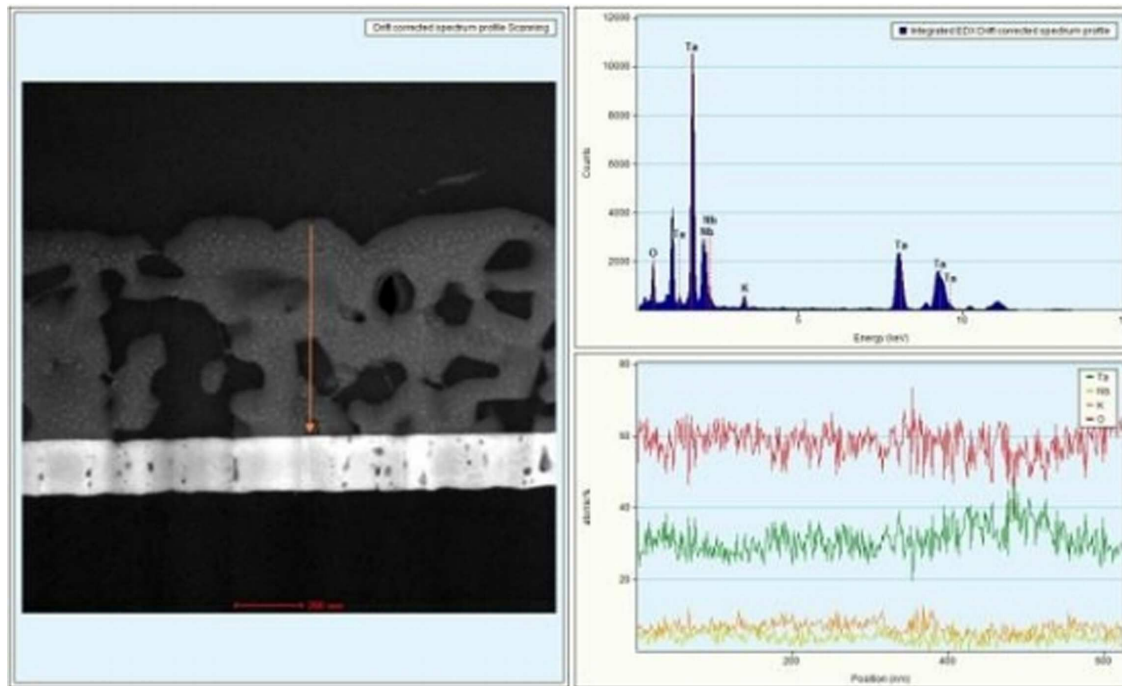
도면8



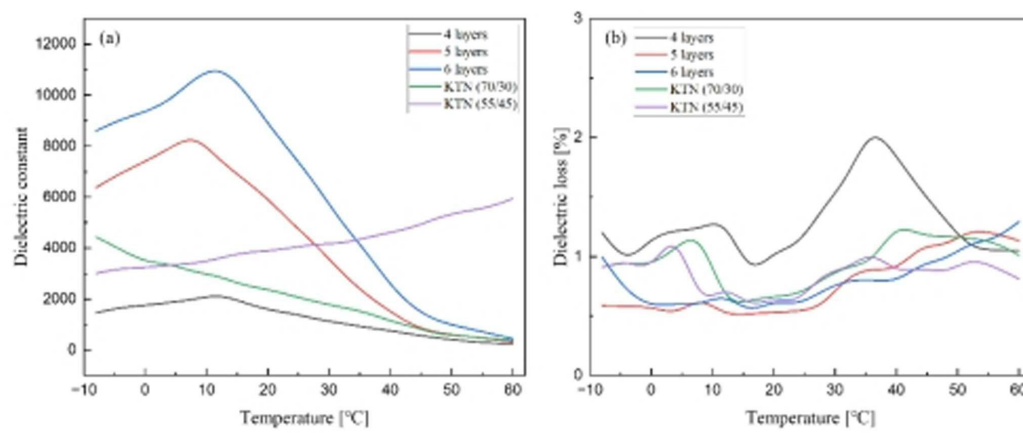
도면9



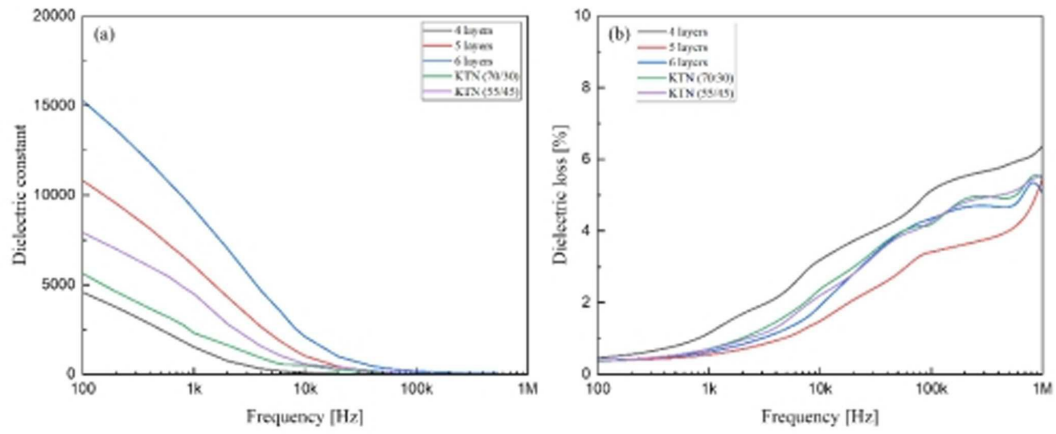
도면10



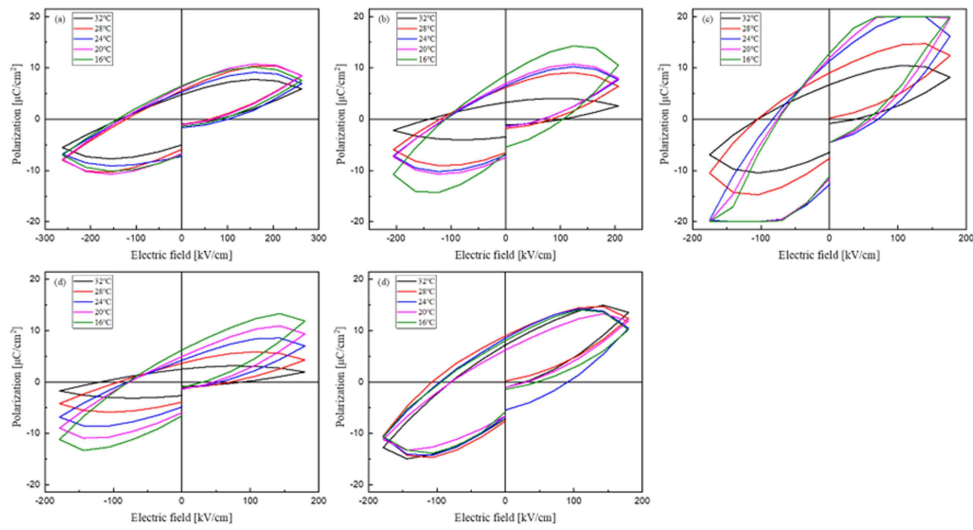
도면11



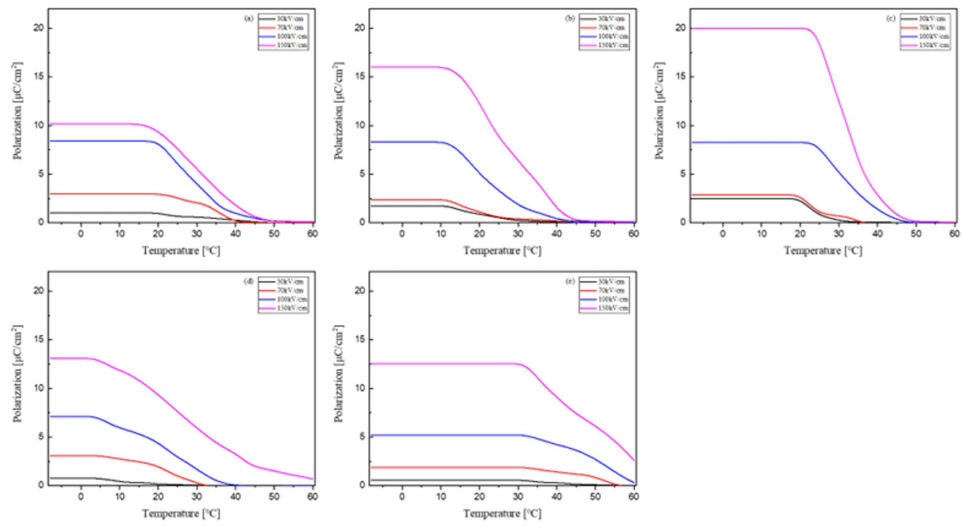
도면12



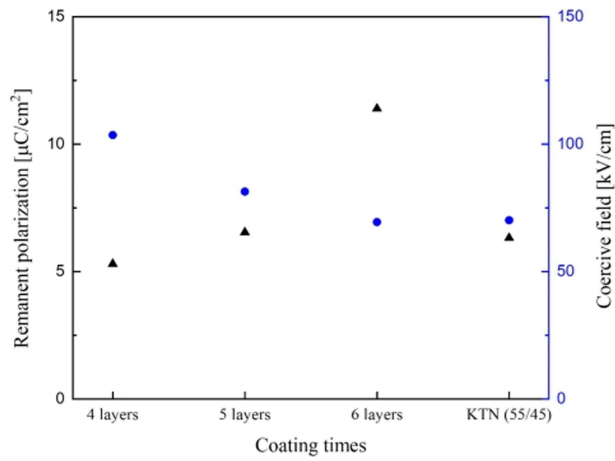
도면13



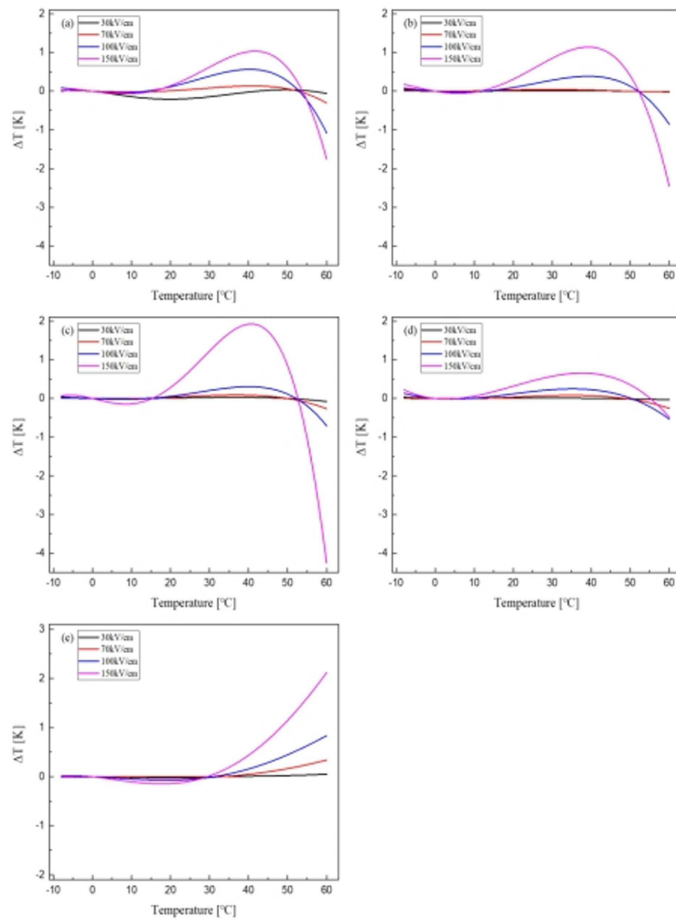
도면14



도면15



도면16



도면17

