



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2014년09월01일
 (11) 등록번호 10-1436468
 (24) 등록일자 2014년08월13일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C04B 35/581 (2006.01) **C04B 35/64** (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2012-0137654
 (22) 출원일자 2012년11월30일
 심사청구일자 2012년11월30일
 (65) 공개번호 10-2014-0072301
 (43) 공개일자 2014년06월13일
 (56) 선행기술조사문헌
 KR100168302 B1*
 KR1019890003857 B1*
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
한국과학기술원
 대전광역시 유성구 대학로 291(구성동)
주식회사 케이씨씨
 서울특별시 서초구 사평대로 344 (서초동)
 (72) 발명자
김도경
 대전 유성구 대학로 291, (구성동, 한국과학기술원)
이현민
 대전 유성구 대학로 291, (구성동, 한국과학기술원)
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
맹성재, 박영우, 이시근

전체 청구항 수 : 총 11 항

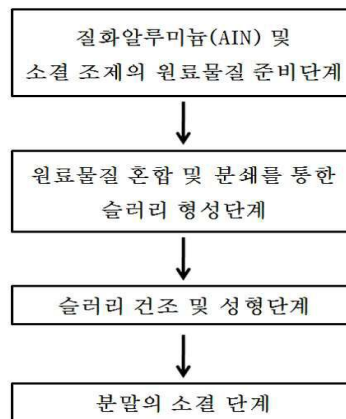
심사관 : 이상미

(54) 발명의 명칭 **고강도 질화알루미늄(AIN) 소결체 및 이의 저온 소결방법**

(57) 요약

본 발명은 질화알루미늄(AIN)을 1600 °C 이하의 저온에서 소결하기 위한 소결조제로서 리튬-전이금속 복합 산화물 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물을 사용하는 질화알루미늄(AIN) 소결체 및 이의 제조방법에 관한 것으로, 본 발명에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체는 저온 소성이 가능하며 우수한 기계적 특성을 가질 수 있다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

이은복

서울 서초구 잠원로 127, 118동 805호 (잠원동, 신
반포아파트)

석인식

경기도 용인시 기흥구 마북동 83번지 446-505

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 G01090225

부처명 KAIST나노융합연구소

연구사업명 산업체연구개발사업

연구과제명 고열전도도 및 고저항의 세라믹 기판소재 개발연구

기 여 율 1/1

주관기관 KAIST

연구기간 2009.11.01 ~ 2012.10.31

특허청구의 범위

청구항 1

질화알루미늄(AlN)을 1600 °C 이하의 저온에서 소결하기 위한 소결조제로서 리튬-전이금속 복합 산화물 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물을 포함하되,

상기 리튬-전이금속 복합 산화물은 화학식 $LiMwOz$ ($0 < W < 4$, $0 < Z < 6$) 로 표시되는 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AlN) 소결체.

청구항 2

삭제

청구항 3

삭제

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 리튬-전이금속 복합 산화물은 $LiFeO_2$, $LiMn_2O_2$ 또는 $LiMn_2O_4$ 인 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AlN) 소결체.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 알칼리 토금속은 Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ra 로부터 선택되는 어느 하나인 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AlN) 소결체.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 희토류 금속 산화물은 화학식 Z_xO_y 으로 표시되는 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AlN) 소결체.

단, 상기 Z는 Sc, Y, La, Ce, Sm, Pr, Nd, Pm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, 및 Lu 로부터 선택되는 어느 하나이며, X 및 Y는 각각 $0 < X < 4$ 및 $0 < Y < 6$ 를 만족하는 실수이다.

청구항 7

삭제

청구항 8

삭제

청구항 9

삭제

청구항 10

- a) 질화알루미늄(AlN)의 원료 분말과 전이금속 산화물; 리튬-전이금속 복합 산화물 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물로 이루어지는 원료물질을 준비하는 단계;
- b) 상기 원료물질을 용매와 함께 혼합하여 슬러리를 형성하는 단계;
- c) 상기 슬러리를 건조하고 이를 성형하여 얻어진 분말을 소결 반응기에 투입하는 단계; 및

d) 상기 반응기의 온도를 승온하여 1600 °C 이하에서 소결시키는 단계를 포함하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법.

청구항 11

- a) 질화알루미늄(AIN)의 원료 분말과 전이금속 산화물; 리튬-전이금속 복합 산화물 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물로 이루어지는 원료물질을 준비하는 단계;
- b) 상기 원료물질을 바인더와 함께 혼합하여 슬러리를 형성하는 단계;
- c) 상기 슬러리를 주입성형(slip casting)하여 시트를 제작하고 이에 의해 얻어지는 성형체 시트(Green sheet)를 소결 반응기에 투입하는 단계; 및
- d) 상기 반응기의 온도를 승온하여 소결시키는 단계를 포함하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법.

청구항 12

제10항에 있어서,

상기 b) 단계의 상기 슬러리를 형성하는 단계는 원료물질과 용매를 혼합하고 이를 포함하는 전체 혼합물을 볼밀을 통해 분쇄하여 슬러리가 형성되도록 하는 것을 특징으로 하는, 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법

청구항 13

제10항에 있어서,

상기 c) 단계에서, 얻어진 슬러리를 건조 후 소결 반응기에 투입하기 전에 냉간 등방압 가압법(CIP)에 의해 분말을 성형하는 단계가 추가되는 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법.

청구항 14

제11항에 있어서,

상기 b) 단계의 상기 슬러리를 형성하는 단계는 원료물질과 바인더 및 용매를 혼합하고 이를 포함하는 전체 혼합물을 볼밀을 통해 분쇄하여 슬러리가 형성되도록 하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는, 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법.

청구항 15

제11항에 있어서,

상기 c) 단계에서, 얻어진 슬러리를 주입성형(slip casting)하여 시트 제작후에 바인더를 제거하는 단계가 추가되는 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법.

청구항 16

제12항 또는 제14항에 있어서,

상기 볼밀을 통해 형성된 입자는 0.1 내지 10 μm이내의 입도 범위를 갖는 것을 특징으로 하는, 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법.

청구항 17

삭제

청구항 18

삭제

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 저온소결이 가능하며, 고열전도성 및 고강도 질화알루미늄(AIN) 소결체 및 이의 제조방법에 관한 것으로, 특히 기계적 특성이 우수하며 고열전도성을 가짐으로써 PCB 기판소재, 방열판, 기계부품 등 다양한 용도에 적용이 가능한 질화알루미늄(AIN) 소결체 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 세라믹스 소결체는 종래의 금속재료와 비교하여 강도, 내열성, 내식성, 내마모성, 경량성 등의 제반 특성이 우수하여 반도체 기판, 전자 기기 재료, 고속 절삭 공구용 재료, 노즐, 베어링 등의 높은 온도, 응력, 마모조건 하에서 사용되는 기계 부품, 기능 부품, 구조재나 장식품 재료로서 널리 이용 되고 있다.

[0003] 일반적으로 사용되고 있는 세라믹스 소결체용 세라믹 소재로는 질화알루미늄(AIN), 산화알루미늄(Al_2O_3), 산화 베릴륨(BeO), 탄화 규소(SiC), 질화 규소(Si_3N_4) 등이 있으며, 낮은 생산원가로 인해 산화알루미늄이 산업적으로 많이 생산되고 있다.

[0004] 한편, 질화알루미늄(AIN)은 양호한 열전도성을 갖는 절연체로서, 낮은 유전상수와 유전 손실, 실리콘(Si)과 유사한 열팽창 계수의 특성을 포함하여 고집적화시킨 반도체 장치의 방열판이나 기판으로서 그의 용도를 넓히고 있다.

[0005] 상기 질화알루미늄(AIN)은 난소결성(sinter-resisting) 세라믹으로 고밀도의 소결체 제조와 소결 온도를 낮추기 위하여 산화이트륨(Y_2O_3) 산화칼슘(CaO) 등과 같은 희토류 금속 산화물, 알칼리 토금속 등을 소결조제로서 사용하는 방법이 일반적으로 사용되고 있다. 그러나 일반적으로 질화알루미늄(AIN)의 소결온도는 1800 °C 이상의 고온으로 알루미늄에 비해 소결하기 어렵고, 이에 따른 많은 소결에너지가 필요하며, 가격이 비싸다는 문제점을 가지고 있다.

[0006] 상기 질화알루미늄(AIN) 소결체에 관한 종래 기술로서, 등록특허공보 제 10-1996-0703766호에서는 희토류 금속 산화물로 이루어진 소결조제와 유리프릿트 및 B, Na, K, Ca, Mn, W 등의 산화물을 첨가제로 하는 소결체의 제조방법에 대해 기재되어 있고, 또한 공개특허공보 제 10-2010-0112712호에서는 내부에 다수의 나노 기공이 형성되어 있는 질화알루미늄(AIN) 원료 분말과 이트륨 알콕사이드, 옐바이트륨, 질화이트륨, 황화이트륨 및 칼슘 알콕사이드 등을 포함하는 소결 조제를 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체에 관한 기술이 기재되어 있다.

[0007] 또한 공개특허공보 제 10-2010-0088479호에서는 산화이트륨과 산화크롬의 소결 조제와 질화알루미늄(AIN) 원료 분말을 1700 ~ 1800 °C의 소결 온도에서 소결함으로써 얻어지는, 높은 열전도성을 나타내는 질화알루미늄(AIN) 소결체에 관한 기술이 기재되어 있다.

[0008] 그러나 현재까지 상기와 같은 종래기술을 포함하여, 질화알루미늄(AIN) 소결체 제조과정에서 저온 소결을 위한 방안으로서 희토류 금속 산화물이나 알칼리 토금속 산화물을 소결조제로서 사용하는 다양한 방법들이 제시되었지만, 산업계에서 요구하는 물성을 충족시키기 위해 저온에서 소결이 가능하며 기계적 강도가 우수한 질화알루미늄(AIN) 소결체 제조를 위한 연구의 필요성은 지속적으로 증대되고 있는 실정이다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0009] (특허문헌 0001) 등록특허공보 제 10-1996-0703766호(1999.05.25)
- (특허문헌 0002) 공개특허공보 제 10-2010-0112712호(2010.10.20)
- (특허문헌 0003) 공개특허공보 제 10-2010-0088479호(2010.08.09)

발명의 내용

해결하려는 과제

[0010] 이에, 본 발명은 저온에서 소결이 가능하며 보다 향상된 기계적 특성을 가지는 질화알루미늄 소결체를 제공하는 것을 특징으로 한다.

[0011] 또한 본 발명은 우수한 기계적 특성을 가지며 저온 소결 가능한 상기 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제조하기 위한 신규한 제조방법을 제공하는 것을 또 다른 발명의 특징으로 한다.

과제의 해결 수단

[0012] 본 발명은 질화알루미늄(AIN)을 1600 °C 이하의 저온에서 소결하기 위한 소결조제로서 리튬-전이금속 복합 산화물 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물을 사용하여 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제공한다.

[0013] 또한 본 발명은 a) 전이 금속 산화물; b) 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 c) 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;을 포함하는 소결 조제, 질화알루미늄(AIN) 원료 분말 및 바인더를 포함하는 조성물로 이루어지는 시트를 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제공한다.

[0014] 또한 본 발명은 질화알루미늄(AIN) 소결체의 열전도율이 50 W/mk 이상이고, 굽힘 강도는 300 MPa 이상의 값을 갖는 것을 특징으로 하는 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제공한다.

[0015] 또한 본 발명은 a) 질화알루미늄(AIN)의 원료 분말과 전이금속 산화물; 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;로 이루어지는 원료물질을 준비하는 단계; b) 상기 원료물질을 용매와 함께 혼합하여 슬러리를 형성하는 단계; c) 상기 슬러리를 건조하고 이를 성형하여 얻어진 분말을 소결 반응기에 투입하는 단계; 및 d) 상기 반응기의 온도를 승온하여 1600 °C 이하에서 소결시키는 단계;를 포함하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법을 제공한다.

[0016] 또한 본 발명은 a) 질화알루미늄(AIN)의 원료 분말과 전이금속 산화물; 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;로 이루어지는 원료물질을 준비하는 단계; b) 상기 원료물질을 바인더와 함께 혼합하여 슬러리를 형성하는 단계; c) 상기 슬러리를 주입성형(slip casting)하여 시트를 제작하고 이에 의해 얻어지는 성형체 시트(Green sheet)를 소결 반응기에 투입하는 단계; 및 d) 상기 반응기의 온도를 승온하여 소결시키는 단계;를 포함하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 또 다른 제조방법을 제공한다.

발명의 효과

[0017] 상기 본 발명에서 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체는 전이금속 산화물과 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스를, 희토류 금속 산화물 또는 알칼리 토금속 산화물과 혼합하여 소결 조제로 사용함으로써, 소결 중 이차상이 형성되는 온도를 낮추어 종래 기술로 제조된 질화알루미늄(AIN) 소결체와 대비하여 저온 소결이 가능하다.

[0018] 또한 본 발명에 의해 제조되는 질화알루미늄(AIN) 소결체는 보다 향상된 기계적 특성 및 고열전도성의 특징을 가질 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0019] 도 1은 본 발명에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법을 개략적으로 나타낸 순서도이다.
- 도 2는 본 발명에 따른 일 실시예의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대밀도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.
- 도 3은 본 발명에 따른 일 실시예의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 열전도도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.
- 도 4는 본 발명에 따른 일 실시예의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 굽힘 강도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.
- 도 5는 본 발명에 따른 또 다른 일 실시예에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대밀도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.
- 도 6은 본 발명에 따른 또 다른 일 실시예에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 열전도도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.
- 도 7은 본 발명에 따른 또 다른 일 실시예에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른

질화알루미늄(AIN) 소결체의 굽힘 강도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.

도 8은 본 발명에 따른 또 다른 일 실시예에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대밀도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.

도 9는 본 발명에 따른 또 다른 일 실시예에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결 조제의 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 주사전자현미경 사진이다.

도 10은 본 발명에 따른 또 다른 일 실시예에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결 조제의 변화에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 굽힘 강도 평가를 나타낸 그래프를 도시한 그림이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0020] 이하, 첨부된 도면을 참조하여 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 본 발명을 용이하게 실시할 수 있는 바람직한 실시예를 상세히 설명한다. 본 발명의 각 도면에 있어서, 구조물들의 사이즈나 치수는 본 발명의 명확성을 기하기 위하여 실제보다 확대하거나 축소하여 도시한 것이고, 특징적 구성이 드러나도록 공지의 구성들은 생략하여 도시하였으므로 도면으로 한정하지는 아니한다. 본 발명의 바람직한 실시예에 대한 원리를 상세하게 설명함에 있어 관련된 공지 기능 또는 구성에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명을 생략한다.
- [0021] 본 발명은, 종래의 질화알루미늄(AIN) 소결체보다 기계적 특성이 우수하며 고열전도성을 가지고 저온 소결이 가능한 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제공하기 위해, a) 전이금속 산화물; b) 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 c) 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;을 포함하는 소결 조제와 질화알루미늄(AIN) 원료 분말을 포함하는 조성물을 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제공한다.
- [0022] 또한 본 발명은 a) 전이 금속 산화물; b) 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 c) 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;을 포함하는 소결 조제, 질화알루미늄(AIN) 원료 분말 및 바인더를 포함하는 조성물로 이루어지는 시트를 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제공한다.
- [0023] 본 발명에서 상기 a) 전이금속 산화물은 화학식 M_xO_y 로 표시되는 것을 특징으로 하며, 상기 전이금속 M은 주기율표상의 전이금속에 해당하면 주기 또는 족에 상관없이 적용가능하나, 상기 전이금속 M은 바람직하게는 Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Y, Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, Lu, Hf, Ta, W, Re, Os, Ir, Pt, Au, Hg, Rf, Db, Sg, Bh, Hs, Mt, Ds, Rg, 및 Cn 으로부터 선택되는 어느 하나의 전이금속일 수 있다. 단, 상기 X 및 Y는 각각 $0 < X < 4$ 및 $0 < Y < 6$ 을 만족하는 실수일 수 있다.
- [0024] 또한, 본 발명에서 상기 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스는 탄산리튬, 수산화리튬, 할로젠화 리튬, 유기산 리튬, Li_2O 및 $LiAlO_2$ 로부터 선택되는 어느 하나가 사용될 수 있다.
- [0025] 상기 할로젠화 리튬으로서는 LiCl, LiBr, LiI 및 LiF 중 어느 하나가 될 수 있고, 상기 유기산 리튬으로서는 리튬아세테이트, 리튬 프로피오네이트와 같은 리튬 카르복실산 염이 가능하다.
- [0026] 이밖에도 소결반응에 의해 산소와 리튬이 결합됨으로써 리튬 산화물을 형성할 수 있는 물질이면 종류에 상관없이 사용할 수 있다.
- [0027] 또한 본 발명에서 상기 알칼리 토금속 산화물은 주기율표의 2족 원소인 Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ra 로부터 선택되는 어느 하나일 수 있다.
- [0028] 또한 본 발명에서 상기 희토류 금속 산화물은 화학식 Z_xO_y 으로 표시되며, Z는 Sc, Y, La, Ce, Sm, Pr, Nd, Pm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, 및 Lu 로부터 선택되는 어느 하나일 수 있으며, 여기서 상기 X 및 Y는 각각 $0 < X < 4$ 및 $0 < Y < 6$ 을 만족하는 실수일 수 있다.
- [0029] 본 발명에서 상기 전이금속 산화물과 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스 대신에, 화학식 LiM_xO_z 로 표시되는 리튬-전이금속 복합 산화물이 소결조제로서 사용될 수 있으며, 여기서 상기 W 및 Z는 각각 $0 < W < 4$, $0 < Z < 6$ 을 만족하는 실수일 수 있다.
- [0030] 본 발명의 상기 질화알루미늄(AIN)의 원료 분말의 함량은 전체 함량의 80 내지 99 wt%이고, 바람직하게는 85 내지 98 wt%이다.
- [0031] 상기 질화알루미늄(AIN)의 원료 분말의 함량이 80 wt% 보다 낮은 경우에는 소결 조제의 함량이 높아져서 소결온

도가 높아질 수 있는 단점이 있고, 원료 분말의 함량이 99 wt% 보다 높은 경우에는 소결 조제가 거의 첨가가 되지 않은 상태로 저온 소결을 이루기가 어렵고, 질화알루미늄(AlN) 소결체의 제조과정시 소결온도가 1900℃ 이상의 고온 소결에서 가능하거나 또는 핫 프레스(hot press)에서 압력을 주어서 고온에서 소결을 하는 식의 방법을 이용해야 하는 단점이 있어 상기와 같은 범위의 조성을 갖는 것이 바람직하다.

- [0032] 또한 본 발명에서 상기 전이금속 산화물의 함유량은 전체 조성물 총 함량의 0.1 내지 10 wt% 이고, 바람직하게는 0.3 내지 3 wt% 가 바람직하다.
- [0033] 또한 본 발명에서 상기 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스 함량은 소결되어 얻어지는 리튬 산화물(Li₂O)을 기준으로 전체 함량의 0.1 내지 10 wt%이고, 바람직하게는 0.3 내지 5 wt% 가 바람직하다. 상기 리튬소스는 리튬 산화물을 기준으로 상기 범위를상을 첨가하는 경우에 액상 소결시 생성되는 액상의 양이 많아져서 오히려 소결성을 떨어뜨릴 수 있고 소결체 표면으로 액상이 넘치는 현상이 일어 날 수 있다.
- [0034] 또한, 본 발명에서 상기 알칼리 토금속 산화물; 또는 희토류 금속 산화물; 에서 선택되는 어느 하나의 성분의 함량은 전체 함량의 0.5 내지 10 wt%이며, 바람직하게는 1 내지 8 wt% 가 바람직하다. 여기에서 전체 함량은 질화알루미늄(AlN)의 원료 분말 및 소결 조제로 사용되는 산화물의 총 함량을 의미한다.
- [0035] 본 발명의 상기 소결조제로서 사용되는 성분인 전이금속 산화물;과 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;의 과도한 사용은 질화알루미늄(AlN) 결정입자의 열전도도는 높아지질 수 있지만 낮은 열전도도를 갖는 이차상이 많이 형성됨으로 소결조제의 양에 따라 열전도도가 증가하였다가 감소하는 경향이 나타날 수 있다. 따라서 상기 소결 조제의 함량이 상기 범위일 때 소결 시 활성이 우수할 수 있다.
- [0036] 본 발명에 의해 얻어지는 질화알루미늄(AlN) 소결체는 열전도율이 50 W/mk이며, 바람직하게는 60 W/mk이상이고, 굽힘 강도는 300 MPa 이상이며, 바람직하게는 400 MPa 이상의 값을 갖는 것을 특징으로 할 수 있다.
- [0037] 또한 본 발명에서 질화알루미늄(AlN) 소결체의 제조방법은 도 1에 기재된 바와 같은 방법으로 질화알루미늄(AlN) 소결체를 제조할 수 있다.
- [0038] 상기 본 발명에서, 질화알루미늄(AlN) 소결체의 제조방법은, a) 질화알루미늄(AlN)의 원료 분말과 전이금속 산화물; 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물; 로 이루어지는 원료물질들을 준비하는 단계; b) 상기 원료물질들을 용매와 함께 혼합하여 슬러리를 형성하는 단계; c) 상기 슬러리를 건조하고 이를 성형하여 얻어진 분말을 소결 반응기에 투입하는 단계; 및 d) 상기 반응기의 온도를 승온하여 소결시키는 단계;를 포함할 수 있다.
- [0039] 본 발명의 원료물질 준비단계 a)에서 질화알루미늄(AlN) 원료 분말, 전이금속 산화물; 과 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물은 앞서 기재한 바와 같이, 상기 질화알루미늄(AlN)의 원료 분말의 함유량은 전체 함량의 85 내지 98 wt%이고, 상기 전이금속 산화물의 함유량은 전체 함량의 0.1 내지 10 wt%이며, 상기 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스 함유량은 소결되어 얻어지는 리튬 산화물(Li₂O)을 기준으로 전체 함량의 0.1 내지 10 wt%이며, 상기 알칼리 토금속 산화물; 또는 희토류 금속 산화물; 에서 선택되는 어느 하나의 함유량은 전체 함량의 0.5 내지 10 wt% 의 함유량을 가질 수 있다.
- [0040] 본 발명의 슬러리 형성단계인 b) 단계에서, 상기 슬러리를 형성하는 단계는 원료물질과 용매를 혼합하고 이를 포함하는 전체 혼합물을 볼밀을 통해 분쇄하여 슬러리가 형성되도록 할 수 있다.
- [0041] 보다 자세하게는, 상기 용매로는 증류수, 에탄올, 메탄올, 이소프로판올 등의 알코올, 탄화수소, 아세톤, 메틸 에틸케톤 등의 케톤류 등을 사용할 수 있으며, 증류수를 사용할 경우 소결체의 특성이 낮아지게 되고 소결성도 떨어지는 단점이 있어, 바람직하게는 이소프로판올 등의 알코올 류를 사용할 수 있다. 경우에 따라 본 발명에서 사용되는 용매에 포함되는 수분의 함량을 줄일 수 있는 것이 바람직 할 수 있다.
- [0042] 이때, 사용되는 용매의 함량은 질화알루미늄의(AlN) 원료 분말이 수화 혹은 산화되는 것을 방지할 수 있을 정도 이면 함량에 구애받지 않으나, 바람직하게는 질화알루미늄 소결체 원료 : 용매 = 3 : 1 내지 1 : 3의 비율일 수 있다.
- [0043] 또한, 상기 슬러리를 형성하기 위해 볼밀을 이용하여 배합 원료를 균일하게 혼합하며 분쇄한다. 볼 밀링에 사용되는 볼은 알루미늄, 지르코니아와 같은 세라믹으로 이루어진 볼을 사용할 수 있으며, 볼은 모두 같은 크기의 것일 수도 있고, 2가지 이상의 크기를 갖는 볼을 함께 사용할 수도 있다. 볼의 크기, 밀링 시간, 볼 밀링기의

분당 회전속도 등을 조절하여 목표하는 입자의 크기로 분쇄한다. 상기 분쇄과정은 목표하는 입자의 크기 등을 고려하여 1 내지 24 시간 동안 실시한다. 분쇄 밀링에 의해 배합 원료는 미세한 크기의 입자로 분쇄되고, 균일한 입자 크기 분포를 갖게 되어 평균입자가 0.6 μm 내지 2.0 μm 이며 바람직하게는 0.9 μm 내지 1.2 μm 를 갖는 슬러리가 형성될 수 있다.

- [0044] 본 발명에서, c) 단계의 슬러리 건조 및 성형단계에서, 얻어진 슬러리는 교반기를 이용하여 침전되지 않도록 100 내지 120 °C에서 40분 내지 1시간 30 분 동안 열판(hot plate)에서 교반시키며 건조할 수 있으며, 이를 60 °C 진공 오븐에서 30분 내지 1 시간 동안 건조하여 균질성을 갖는 분말을 제조할 수 있다.
- [0045] 또는 건조과정에서 회전증발기(rotary evaporator)를 이용하여 80 내지 90 °C의 온도에서 중탕시키며, 진공 분위기에서 1시간 30분 내지 2시간 동안 건조할 수 있다. 본 발명은 상기 건조된 분말을 소결 반응기에 투입하기 전에 냉간 등방압 가압법(CIP)에 의해 분말을 성형하여, 지름 30 mm, 두께 2.5 mm 원반형 성형체로 만드는 과정을 포함할 수 있다. 상기 냉간 등방압 가압법의 압력은 100~1000 기압의 범위 내에서 처리할 수 있고, 바람직하게는 100 내지 500 MPa의 압력 조건에서 수행할 수 있다.
- [0046] 냉간 등방압 가압법(CIP)은 물 등의 액체를 압력 매체로 하여 재료를 물속에 재료를 넣고, 높은 등방압으로 압력을 주는 방법으로, 박막을 갖는 기관의 전체면을 가압하므로, 고밀도로 균일성이 있는 성형체를 형성할 수 있다.
- [0047] 또한 본 발명의 질화알루미늄(AlN) 소결체의 또 다른 제조방법으로서, a) 질화알루미늄(AlN)의 원료 분말과 전이금속 산화물; 소결하여 리튬 산화물로 변환될 수 있는 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물;로 이루어지는 원료물질을 준비하는 단계; b) 상기 원료물질을 바인더와 함께 혼합하여 슬러리를 형성하는 단계; c) 상기 슬러리를 주입성형(slip casting)하여 시트를 제작하고 이에 의해 얻어지는 성형체(Green sheet)를 소결 반응기에 투입하는 단계; 및 d) 상기 반응기의 온도를 승온하여 소결시키는 단계;를 포함할 수 있다.
- [0048] 본 발명의 원료물질 준비단계 a)에서 질화알루미늄(AlN) 원료 분말, 전이금속 산화물;과 리튬 소스; 및 알칼리 토금속 산화물 또는 희토류 금속 산화물은 앞서 기재한 바와 동일한 함량을 가질 수 있다.
- [0049] 본 발명의 슬러리 형성단계인 b) 단계에서, 상기 슬러리를 형성하는 단계는 원료물질과 바인더 및 용매를 혼합하고 이를 포함하는 전체 혼합물을 볼밀을 통해 분쇄하여 슬러리가 형성되도록 할 수 있다.
- [0050] 보다 자세하게는, 상기 바인더로는 폴리비닐 부티랄 수지(polyvinyl butyral resin), 셀룰로스 수지, 아크릴수지(acrylic resin), 비닐 아세테이트 수지, 폴리비닐 알코올 수지 등이 주로 사용될 수 있으나, 이에 국한되지는 않는다.
- [0051] 본 발명에서의 상기 바인더의 함량은 총 혼합액을 기준으로 3 내지 20 wt%일 수 있고, 바람직하게는 5 내지 15 wt%일 수 있다.
- [0052] 또한 본 발명에서 분산제로서 상기에 언급된 바인더의 저분자 화합물을 추가적으로 사용할 수 있고, 추가적으로 용매를 사용할 수 있다. 이경우에 사용되는 용매는 톨루엔, 자일렌, 벤젠, 시클로헥산 등의 탄화수소가 사용되거나 또는 에탄올, 이소프로필알콜, 부탄올 등의 알코올이 사용될 수 있고, 이들의 혼합액이 사용될 수 있다.
- [0053] 또한 상기 슬러리를 형성하기 위해 가소제를 추가적으로 사용할 수 있다. 이 경우 사용되는 가소제는 프탈레이트 계열이 바람직하나, 이에 국한되지는 않는다.
- [0054] 또한, 상기 슬러리를 형성하기 위해 볼밀을 이용하여 배합 원료를 균일하게 혼합하며 분쇄하는데 1차 볼 밀링으로 3 시간 내지 3일 정도 진행할 수 있다.
- [0055] 또한 상기 바인더는 볼 밀링 과정이후에 추가로 투입될 수 있고, 이 경우 볼밀 가공은 6시간 내지 24시간 동안 2차 볼 밀링을 진행할 수 있다.
- [0056] 본 발명에서, c) 단계의 얻어진 슬러리를 주입성형(slip casting)하여 시트를 제작하여 성형체 시트(green sheet)로 만드는 방법은 아래의 과정을 포함할 수 있다.
- [0057] 주입성형(slip casting)은 몰드 안에서 고형물체로 만들어 성형하기 위하여, 주입될 슬러리를 만든 후, 일정형상의 형틀(몰드)내에 부어서 성형체를 형성할 수 있으며, 상기 본 발명에서 주입성형 후 바인더 제거를 위해 상온에서 600°C 까지 12시간 내지 48시간 동안 서서히 승온 후 600 °C에서 2 시간 내지 8시간 유지하면서 바인더가 충분히 제거되는 과정을 포함할 수 있으며, 이후 다시 상온으로 4시간 내지 24시간 동안 서서히 온도를 감소

하여 바인더가 완전히 제거된 성형체를 얻을 수 있다.

- [0058] 또한, 본 발명의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 또 다른 제조방법의 상기 a) 단계에서, 상기 리튬 소스와 전이금속 산화물을 각각 준비하는 대신에 화학식 LiM_nO_z 로 표시되는 리튬-전이금속 복합 산화물을 준비하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법을 제공할 수 있다. 여기서 상기 W 및 Z는 각각 $0 < W < 4$, $0 < Z < 6$ 을 만족하는 실수이다.
- [0059] 상기 리튬-전이금속 복합 산화물은 리튬산화물과 전이금속 산화물로부터 제조할 수 있으며, 상업적으로 입수 가능할 수 있다. 또한 상기 리튬-전이금속 복합 산화물의 함량은 리튬 소스와 전이금속 산화물을 각각 사용할 때의 각각의 리튬 산화물로 변환된 함량과 전이금속 산화물을 함량을 기준으로 각각의 성분과 동등하거나 또는 적어도 하나의 성분은 동등한 범위 내에서 사용할 수 있다.
- [0060] 바람직하게는 상기 리튬-전이금속 복합 산화물은 질화알루미늄(AIN) 원료분말 및 소결 조제의 총 함량을 기준으로 1 내지 10 wt% 일수 있다.
- [0061] 본 발명의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 제조방법에서 상기 d) 단계에서 소결온도 1600 °C 이하에서 소결할 수 있다.
- [0062] 이때 사용되는 승온 조건은 첫 번째 제조방법의 경우 분당 20 °C 에서 40 °C 범위에서 승온될 수 있고, 바람직하게는 분당 10 °C 범위로 승온할 수 있으며, 두 번째 제조방법의 경우 분당 1.0 °C에서 3.0 °C가 바람직하다. 또한 소결 온도 유지 시간은 두 가지 제조방법 모두 1시간 내지 10시간, 바람직하게는 1시간 내지 5시간으로 이루어질 수 있다.
- [0063] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 상세히 설명하고자 한다. 이들 실시예는 오로지 본 발명을 예시하기 위한 것으로, 본 발명의 범위가 이들 실시예에 의해 제한되는 것으로 해석되지 않는 것은 당업계에서 통상의 지식을 가진 자에게 있어서 자명할 것이다.
- [0064] <실시예>
- [0065] 실시예 1
- [0066] 이하 본 발명의 질화알루미늄(AIN) 소결체를 제조하기 위한 첫 번째 단계인, 초기 분말준비단계로서 두 가지 형태의 소결조제를 준비하였다.
- [0067] **초기 분말준비 A : $CaO + Fe_2O_3 + Li_2O$ (이하 LFC라 한다.)**
- [0068] 질화알루미늄(AIN) 원료 분말(산소 함유량 0.85 wt%, 평균 입자 직경 0.9~1.0 μm) 5.73 g 과 소결 조제로 전이금속 산화물 Fe_2O_3 0.12 g (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 0.6 μm) 2 wt% 와 알칼리 토금속 산화물 CaO 0.12 g (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 3.0 μm) 2 wt%, 그리고 리튬 산화물 Li_2O 0.03 g (0.5 wt%)을 준비한다.
- [0069] **초기 분말준비 B: $CaO + LiFeO_2$ (이하 CLF라 한다.)**
- [0070] 상기 초기 분말준비 A 과정의 전이금속 산화물 및 리튬 산화물을 각각 준비하는 대신에 전이금속-리튬 복합 산화물로서 $LiFeO_2$ 0.12 g (2.0 wt%, 순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 2.0 μm)을 준비한다.
- [0071] 두 번째 단계로서, 준비된 초기 분말 LFC 와 CLF를 각각 용매인 이소프로판올 100 ml 에 혼합하여 지르코니아 불을 이용하여 상온에서 400 rpm 으로 24시간 동안 불 밀링을 통해 원료를 혼합 및 분산시켜 슬러리를 제조한다.
- [0072] 이때 얻어진 분말의 평균입도는 0.85 μm 이었다.
- [0073] 세 번째 단계로서, 얻어진 슬러리는 마그네틱바를 이용하여 침전되지 않도록 교반시키며 120 °C에서 1.5 시간 동안 건조하였으며 이를 진공오븐에서 60°C, 1시간 동안 완전 건조시켰다. 건조된 분말 중 1.4 g을 취하여, 200 MPa의 압력 조건의 냉간 등방압 가압법(CIP)에 의해 지름 20 mm, 두께 2.5 mm 의 원반형 성형체로 만든다.
- [0074] 네 번째 단계는 소결단계로서, 얻어진 성형체를 그래파이트 도가니(Graphite crucible)에 담은 후, 소결 반응기로서 그래파이트 퍼니스(Graphite furnace) 안에 넣어준다. 소결 반응기에서 분당 10°C로 단계적으로 승온하여, 소결온도에 도달하도록 하며 원료분말의 소결을 진행하였다.

[0075] 상기 소결반응시 질소분위기를 유지함으로써, 소결 중 산화를 방지하도록 하였다. 질소분위기 하에서 1500 °C, 1550 °C, 1600°C, 1700 °C 로 소결온도를 달리하여 소결한 것을 실시예 1-1, 실시예 1-2, 실시예 1-3, 실시예 1-4로 구분하여 이들을 각각 3시간 동안 소결하였다.

[0076] 마지막 단계로서 소결되어 얻어진 질화알루미늄 소결체를 회수하였고, CIP 후 소결 전의 성형체의 질량과 소결 후의 질량 변화를 측정하였으며, 최종적으로 질화알루미늄 소결체는 각각 실시예 1-1 1.4 g, 실시예 1-2 1.4 g, 실시예 1-3 1.4 g, 실시예 1-4 1.4 g 을 얻었으며, 이때 약 0.02 ~ 0.04 g의 오차범위를 갖는다. **소결 전과 소결 후의 비교 사항으로 약 15~ 20 %의 수축률을 갖는 것을 확인하였다.**

[0077] 질화알루미늄(AIN) 소결체의 특성평가

[0078] 본 발명에서 얻어진 질화알루미늄(AIN) 소결체의 특성평가로서, 소결체의 열전도도의 측정 방법으로는 레이저 플래시법(Laser Flash Method)을 이용하여 평가하였다. 고체 재료의 열전도율은 레이저 플래시 법으로 측정된 열확산율과 별도로 구한 비열 용량, 밀도의 곱으로 계산하였다. 레이저 플래시 법은 평판 모양 시료의 두께(d) 방향의 열확산율(α)을 레이저광에 의한 펄스 가열 후 시료 표면의 온도가 상승하여 시료 전체의 온도가 균일하게 될 때까지의 시간(τ)을 방사 온도계로 측정하여 구한다.

[0079] (소결체의 상대밀도 측정)

[0080] 도 2에서는 CaO 2 wt%, Fe₂O₃ 2 wt%, Li₂O 0.5 wt% 가 함유된 LFC 와 CaO 2 wt%, LiFeO₂ 2 wt% 가 함유된 CLF 형태의 성형체를 3시간 동안 상압 소결 상태에서 실시예 1-1, 실시예 1-2, 실시예 1-3, 실시예 1-4에 따른 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대밀도 그래프를 도시하였다. 상기 도 2에서, 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대 밀도가 1550 °C 부근에서 이론밀도에 도달하였음을 확인할 수 있다.

[0081] (소결체의 열전도도 평가)

[0082] 도 3에서는 상기 실시예에서 제조한 LFC, CLF 형태의 성형체를 실시예 1-1, 실시예 1-2, 실시예 1-3, 실시예 1-4에 따른 열전도도 그래프를 도시하였으며, 1500 °C 저온에서 75 W/mk 이상의 열전도도 값을 갖는 것을 나타내고 있다.

[0083] 일반적으로 질화알루미늄(AIN) 소재의 열전도도는 크게 두 가지 요소에 의해 결정될 수 있다. 하나는 높은 열전도도를 가지는 질화알루미늄(AIN) 결정입자이며, 다른 하나는 소결조제와 반응하여 생성된 낮은 열전도도를 가지는 이차상에 의한 요소이다. 상기 질화알루미늄(AIN)의 소결과정에서 소결조제는 질화알루미늄(AIN) 입자의 Al₂O₃ 와 결합하여 산화물계 이차상을 형성함으로써 질화알루미늄(AIN) 격자내의 산소에 기인한 결함을 줄이고 질화알루미늄(AIN) 입자의 열전도도를 향상시킨다. 그러나 입계에 형성된 이차상은 그 자체로서 낮은 열전도도를 가지고 있기 때문에 소결체 전체의 열전도도를 낮추는 역할 또한 할 수 있다. 따라서 고열전도도를 달성하기 위해 질화알루미늄(AIN) 결정립의 열전도도를 높이면서도, 낮은 열전도도를 갖는 이차상을 줄이기 위해 저온 소결온도 및 소결 조건을 설정하는 것은 중요하다. 질화알루미늄(AIN) 소결체의 밀도와 열전도도를 보다 구체적으로 하기 표 1에 나타내었다. 이를 살펴보면 소결온도가 상승함에 따라 열전도도가 증가하는 것을 확인할 수 있으며, 리튬 산화물이 소결 조제로 포함되어 질화알루미늄(AIN)과 소결되어 제조된 질화알루미늄(AIN) 소결체에 있어서 1500 °C의 저온 소결에 의해서 제조하여도, 결정 조직이 치밀하여 미세하므로 밀도 및 열전도율이 함께 우수해지는 것을 확인할 수 있다.

[0084] 또한 질화알루미늄(AIN) 소결체의 밀도가 증가할수록 열전도도 역시 높아지는 것을 확인할 수 있다.

표 1

	밀도 (%)		열전도도 (W/mk)	
	LFC	CLF	LFC	CLF
실시예 1-1	92.0	94.5	76.0	82.0
실시예 1-2	96.5	100	98.0	90.0
실시예 1-3	97.2	99.5	110	99.0
실시예 1-4	98.7	100	135	120

[0085]

[0086] (소결체의 기계적 강도 측정)

[0087] 또한, 본 발명에 사용하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 은 3점 굽힘법(3-point bending test)을 통해 평가하였다.

[0088] 상기 실시예에서 제조한 LFC과 CLF 형태의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 기계적 강도 측정을 위해 3점 굽힘법(3-point bending test)을 통해 질화알루미늄(AIN) 소결체의 굽힘 강도를 평가하였다.

[0089] 상기 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도는 1500 °C 내지 1700 °C의 범위에 따라 상기 기계적 강도의 측정을 평가하여, 그 결과는 도 4 에 나타내었다.

[0090] 상기 도 4를 보다 구체적으로 살펴보면, 1550 °C에서 LFC과 CLF 형태의 질화알루미늄(AIN) 소결체 모두 기계적 강도가 400 MPa 이상으로 높게 평가되었으며, 저온 소결 시에도 기계적 강도가 유지되는 것을 알 수 있다.

[0091] 실시예 2

[0092] 상기, 실시예 1과 동일하게 실시하되, 전이금속 산화물로 Mn₂O₃ 1 wt% 사용한 것을 제외하고는 실시예 1과 동일하게 실험하였다. 최종적으로 각각 1.4 g의 소결체가 제조되었다.

[0093] **질화알루미늄(AIN) 소결체의 특성평가**

[0094] (소결체의 상대밀도 측정)

[0095] 도 5 는 실시예 1에 따른 방법에 의해 수행되며, CaO 1 wt%, Mn₂O₃ 1 wt%, Li₂O 0.5 wt% 가 함유된 원료물질(이하 LMC라 한다.)의 성형체와 CaO 2 wt%, LiMn₂O₂ 2 wt% 가 함유된 원료물질(이하 CLM이라 한다.)의 성형체를 3 시간 동안 상압 소결 상태에서 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체(실시예 2-1, 실시예 2-2, 실시예 2-3, 실시예 2-4)의 상대밀도 그래프를 도시하였다.

[0096] (소결체의 열전도도 평가)

[0097] 도 6 은 상기 실시예에서 제조한 LMC, CLM 형태의 성형체를 실시예 2-1, 실시예 2-2, 실시예 2-3, 실시예 2-4에 따른 열전도도 그래프를 도시하였으며, 1500°C 저온에서 64 W/mk 이상의 열전도도 값을 갖는 것을 나타내고 있다.

[0098] 전이금속 산화물로 Mn₂O₃를 포함하는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 밀도와 열전도도를 보다 구체적으로 하기 표 2 에 나타내었다.

표 2

	밀도 (%)		열전도도 (W/mk)	
	LMC	CLM	LMC	CLM
실시예 2-1	93.0	90.2	64	84
실시예 2-2	95.5	97.0	68	92
실시예 2-3	96.0	96.5	70	100
실시예 2-4	97.0	97.5	80	110

[0099]

[0100] 이를 살펴보면 소결온도가 상승함에 따라 열전도도가 증가하는 것을 확인할 수 있으며, 전이금속 산화물로 Mn₂O₃가 포함된 질화알루미늄(AIN)과 소결되어 제조된 질화알루미늄(AIN) 소결체에 있어서 1500 °C의 저온 소결에 의해서 제조하여도, 밀도 및 열전도율의 특성을 갖는 것을 확인할 수 있다.

[0101] (소결체의 기계적 강도 측정)

[0102] 도 7에서는 상기 실시예에서 제조한 LMC, CLM 형태의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 1500 °C 내지 1700 °C의 범위에서 굽힘 강도를 평가하였다. 보다 구체적으로 LMC 형태의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 경우 소결온도 1500°C에서 250 MPa 범위의 굽힘 강도가 측정되었으며, CLM 형태의 질화알루미늄(AIN) 소결체의 경우 150 MPa 범위의 굽힘 강도가 측정되었다.

[0103] 실시예 3

[0104] 상기, 실시예 1과 동일하게 실시하되, 전이금속 산화물 및 리튬 산화물의 함량을 변화시키고, 또한 알칼리 토금속인 CaO대신에 희토류 금속 산화물로서 Y₂O₃을 1 wt% 및 2 wt% 사용하였다.

[0105] 최종적으로 1.4 g의 소결체가 제조되었다.

[0106] **질화알루미늄(AIN) 소결체의 특성평가**

[0107] (소결체의 상대밀도 측정)

[0108] 도 8 은 실시예 3에 따른 방법에 의해 수행되며, Li₂O 1 wt%, Fe₂O₃ 1 wt%, Y₂O₃ 1 wt% 가 함유된 원료물질(이하 LFY_1라 한다.)의 성형체와 Li₂O 1 wt%, Fe₂O₃ 2 wt%, Y₂O₃ 2 wt%(이하 LFY_2라 한다.) 및 Li₂O 2 wt%, Fe₂O₃ 2 wt%, Y₂O₃ 2 wt%(이하 LFY_3라 한다.)의 성형체를 3시간 동안 상압 소결 상태에서 소결함으로써 얻어지는 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대밀도 그래프를 도시하였다. 이를 살펴보면 희토류 금속 산화물로 Y₂O₃가 포함된 질화알루미늄(AIN) 소결체의 경우 소결온도 1500°C에서 80% 이상의 상대밀도를 나타내며, 희토류 금속 산화물로 Y₂O₃의 함량의 증가에 따라 상대밀도가 증가하며, 또한 전이금속 산화물의 함량과 리튬 산화물의 함량의 증가에 따라서도 질화알루미늄(AIN) 소결체의 상대밀도가 증가하는 것을 확인할 수 있다.

[0109] 실시예 4-1

[0110] 이하 질화알루미늄(AIN) 소결체 제조를 위한 첫 번째 단계로, 질화알루미늄(AIN) 원료 분말(산소 함유량 0.85 wt%, 평균 입자 직경 0.9~1.0 μm) 96 wt% 와 소결 조제로 전이금속 산화물 Fe₂O₃ (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 0.6 μm) 2 wt% 와 알칼리 토금속 산화물 CaO (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 3.0 μm) 2 wt% 원료물질(이하 FC라 한다.)을 준비한다.

[0111] 두 번째 단계로서, 준비된 초기 분말 FC 73 wt% 와 분산제 2 wt%, 톨루엔과 부탄올 2:1 혼합물 25 wt%를 혼합하여 Nylon 볼을 이용하여 상온에서 91 rpm 으로 24시간 동안 1차 볼 밀링 후에 바인더로서 폴리비닐 부티랄계 수지와 가소제로서 디옥틸프탈레이트를 각각 1차 볼밀링의 혼합조성물의 총 함량 대비 8wt%, 4wt% 를 추가로 투입

하고, 이후 12시간 추가 불 밀링을 통해 원료를 혼합 및 분산시켜 슬러리를 제조한다.

[0112] 세 번째 단계로서, 얻어진 슬러리는 주입성형(slip casting)하여 시트 제작 후 바인더를 제거하였다. 바인더를 제거를 위해 상온에서 600 °C까지 29 시간동안 서서히 승온하였으며, 600 °C에서 5시간 유지 후 8시간 동안 다시 상온으로 온도를 감소하여 가로 80 mm, 세로 100 mm, 두께 1 mm의 시트 형태의 성형체로 만든다.

[0113] 네 번째 단계는 소결단계로서, 얻어진 성형체를 4장 적층하여 소결 반응기에 넣어준다. 소결반응기에서 상온에서부터 2.5 °C/min 로 1170 °C 승온 후 1.0 °C/min 으로 1270 °C, 2.0 °C/min 으로 1650 °C까지 서서히 승온 후 1650 °C에서 3시간 동안 소결하였다.

[0114] 소결 후 1650 °C에서 1.0 °C/min 으로 1200 °C까지, 2.0 °C/min 으로 상온까지 온도를 내린 후 소결되어 얻어진 질화알루미늄(AIN) 소결체를 회수하였고, 소결 전의 성형체의 질량과 소결후의 질량 변화를 측정하였다.

[0115] 실시예 4-2

[0116] 상기, 실시예 4-1과 동일하게 실시하되, 질화알루미늄(AIN) 원료 분말(산소 함유량 0.85 wt%, 평균 입자 직경 0.9~1.0 μm) 95.5 wt% 와 소결 조제로 전이금속 산화물 Fe₂O₃ (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 0.6 μm) 2 wt% 와 알칼리 토금속 산화물 CaO (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 3.0 μm) 2 wt% 그리고 리튬 산화물 LiAl₂O (0.5 wt%)을 원료물질(이하 LFC-2라 한다.)로 사용한 것을 제외하고는 실시예 4-1과 동일하게 실험하였다.

[0117] 실시예 4-3

[0118] 상기, 실시예 4-1과 동일하게 실시하되, 질화알루미늄(AIN) 원료 분말(산소 함유량 0.85 wt%, 평균 입자 직경 0.9~1.0 μm) 96 wt% 와 소결 조제로 리튬-전이금속 복합 산화물 LiMn₂O₄ (순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 0.6 μm) 2 wt% 와 알칼리 토금속 산화물 CaO(순도 99% 이상, 평균 입자 직경 약 3.0 μm) 2 wt%을 원료물질(이하 C(LM)이라 한다.)로 사용한 것을 제외하고는 실시예 4-1과 동일하게 실험하였다.

[0119] 실시예 4에 의해 제조된 질화알루미늄(AIN) 소결체의 특성평가

[0120] (소결체의 상대밀도 측정)

[0121] 실시예 1에 따른 방법에 의해 수행되며, 실시예 4-1은 93.77 %, 실시예 4-2 는 92.51 %, 실시예 4-3은 92.06 % 의 상대밀도를 확인 할 수 있다.

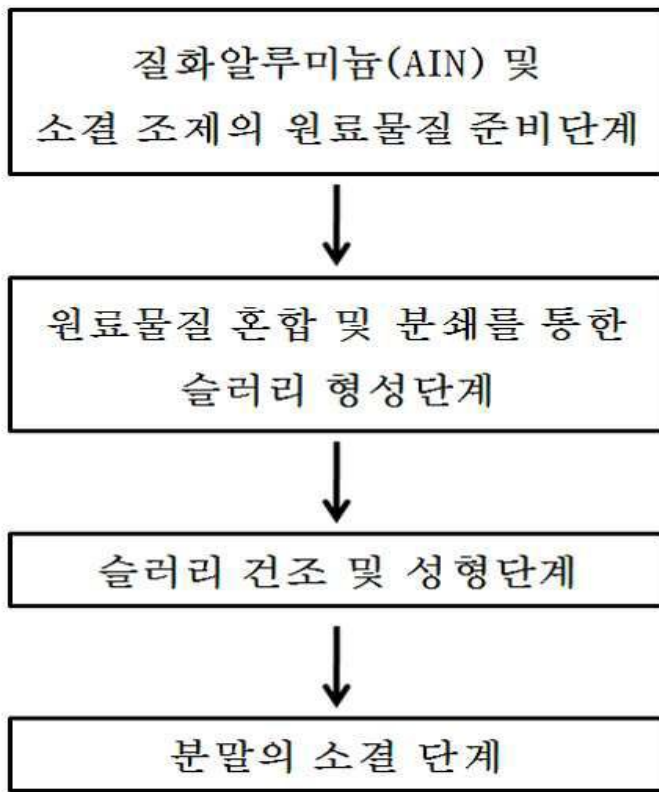
[0122] 도 9는 실시예 4-1 내지 실시예 4-3의 주사전자현미경(Scanning Electron Microscope; SEM) 사진이다.

[0123] (소결체의 기계적 강도 측정)

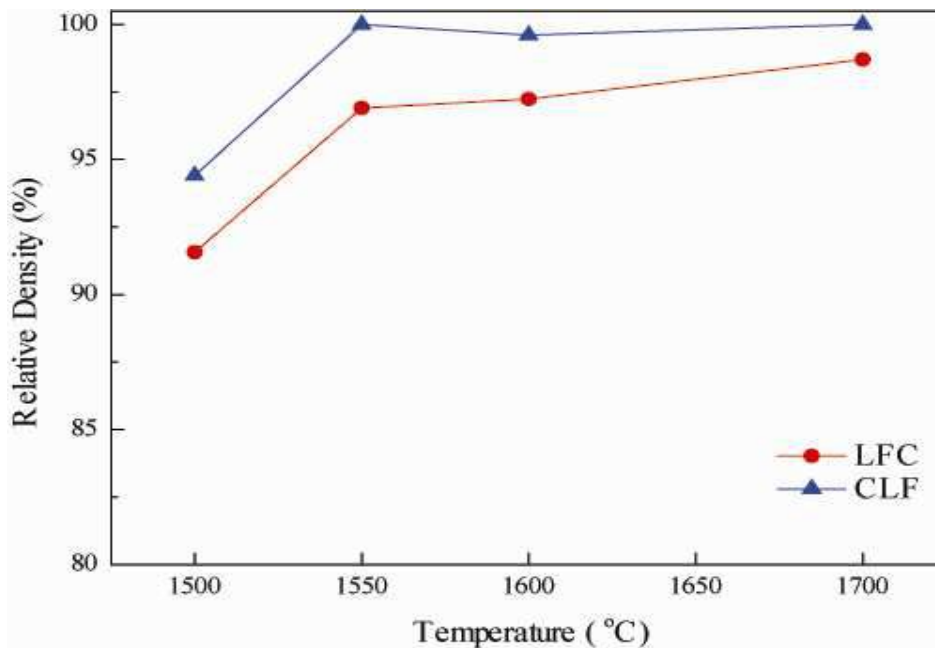
[0124] 도 10 은 상기 실시예 4-1 내지 실시예 4-3에서 제조한 질화알루미늄(AIN) 소결체의 소결온도 1600 °C 범위에서 굽힘 강도를 평가하였다. 보다 구체적으로, 실시예 4-1 내지 실시예 4-3에서 동일한 조건의 질화알루미늄(AIN) 소결체를 각각 5개(샘플 1 내지 5)씩 제조하였으며, 모두 400 MPa 이상의 굽힘 강도가 측정되었다.

도면

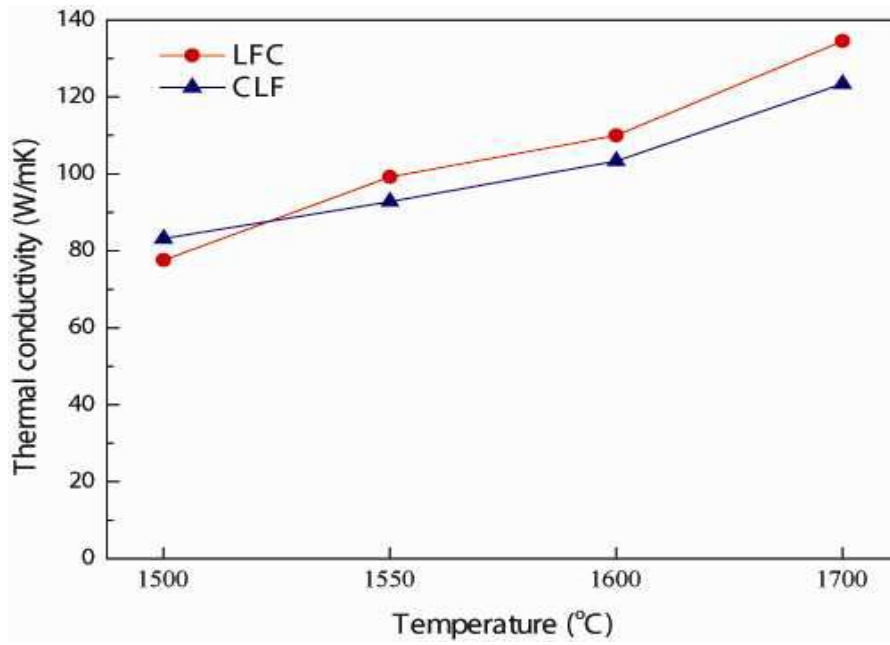
도면1



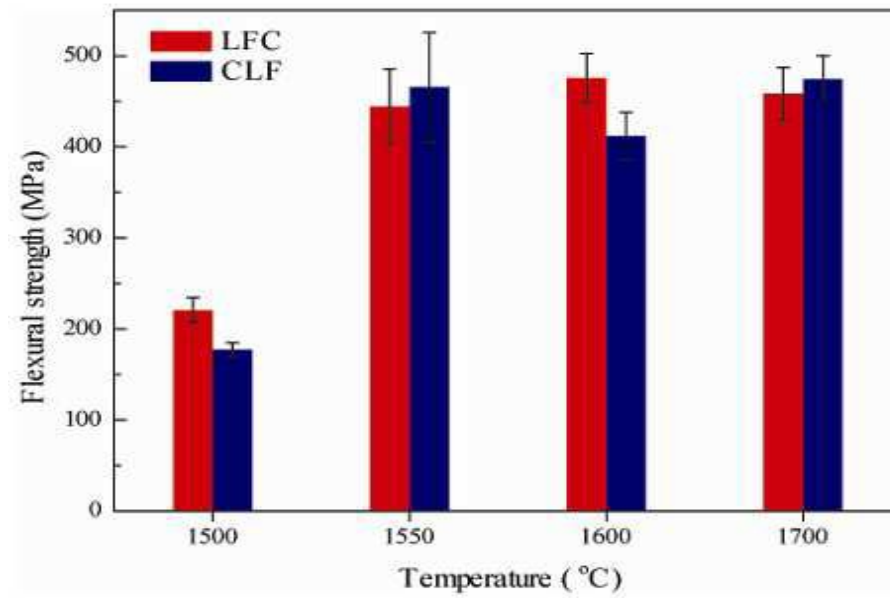
도면2



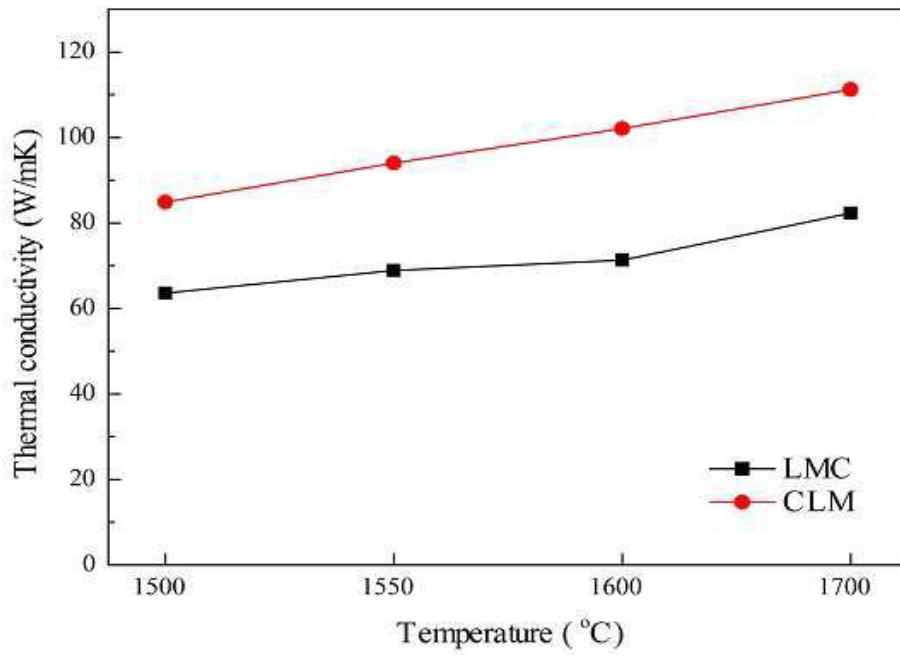
도면3



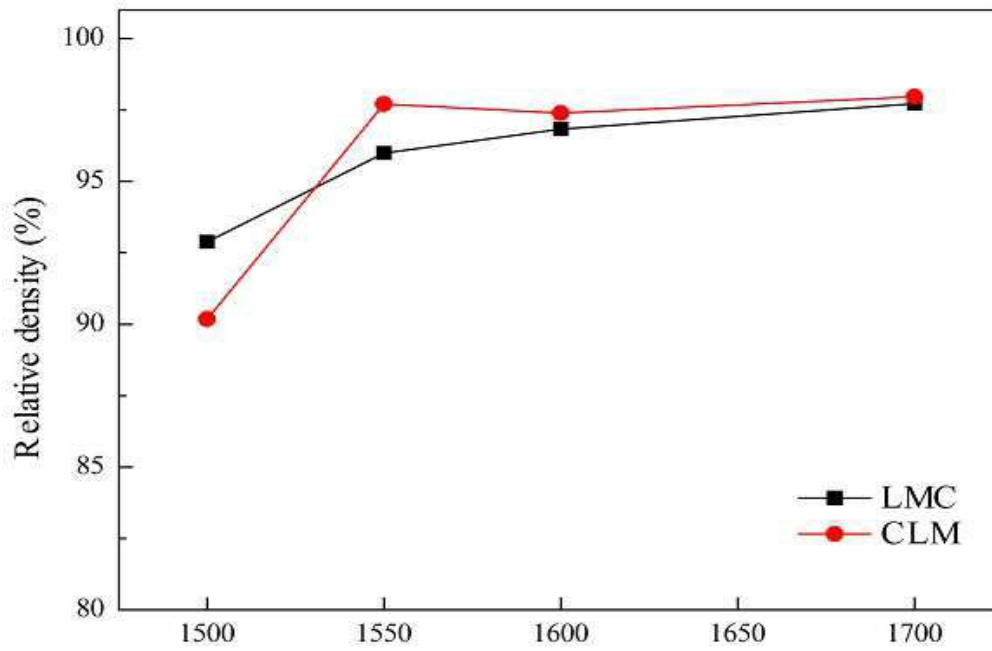
도면4



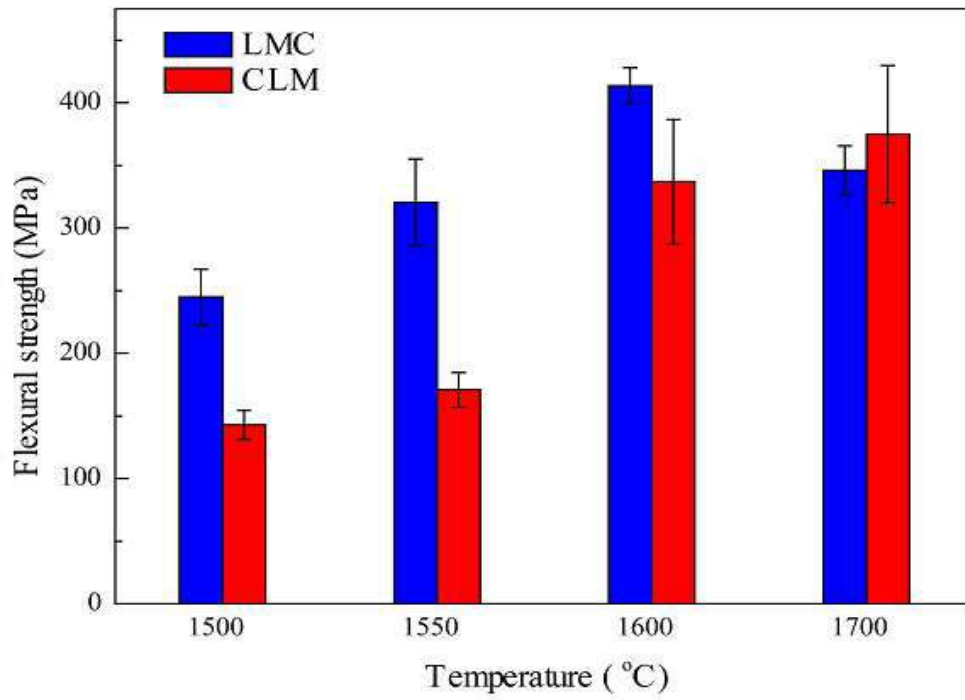
도면5



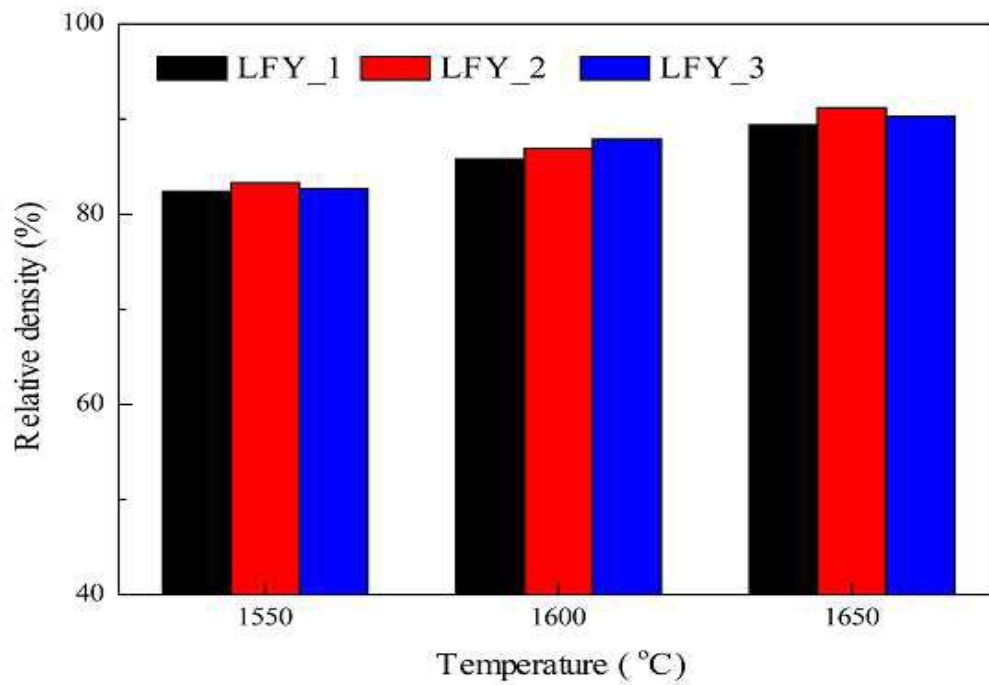
도면6



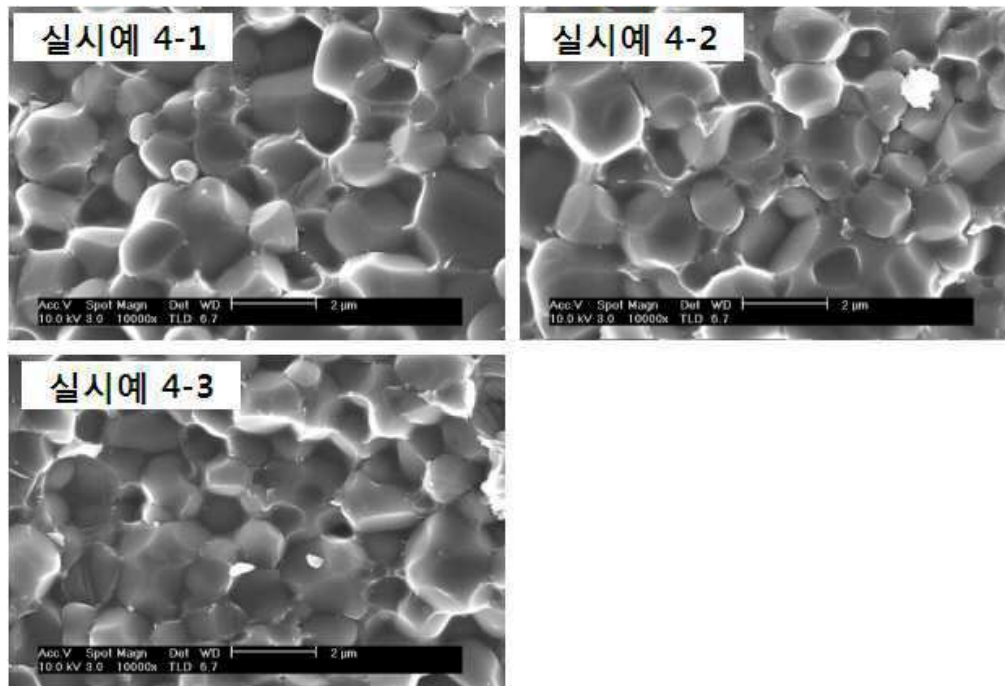
도면7



도면8



도면9



도면10

