



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2019-0132152
(43) 공개일자 2019년11월27일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C30B 29/68 (2006.01) C30B 29/10 (2006.01)
H01L 23/14 (2006.01) H01L 41/08 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C30B 29/68 (2013.01)
C30B 29/10 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2018-0057454
(22) 출원일자 2018년05월18일
심사청구일자 2019년08월02일

(71) 출원인
연세대학교 산학협력단
서울특별시 서대문구 연세로 50 (신촌동, 연세대학교)
(72) 발명자
심우영
서울특별시 서초구 명달로4길 30, 501동 104호 (서초동, 서초5차대림이편한세상)
김혜수
서울특별시 서초구 잠원로 136, 344동 405호(잠원동, 신반포25차아파트)
원중범
서울특별시 노원구 노원로 569, 5동 1003호(상계동, 임광아파트)
(74) 대리인
특허법인이름리온

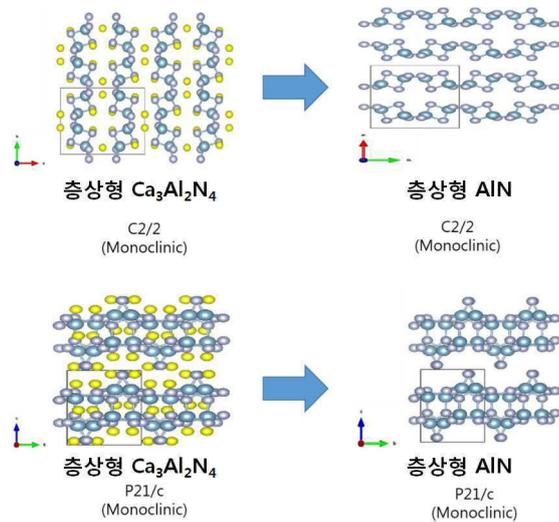
전체 청구항 수 : 총 10 항

(54) 발명의 명칭 **층상형 AlN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 AlN 나노시트**

(57) 요약

본 발명은 층상형 AlN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 AlN 나노시트에 관한 것이며, 더욱 상세하게는 종래의 벌크형 AlN와 달리 2차원 결정 구조를 갖고, 박리성이 우수하여 나노시트의 형태로 박리하기 용이하며, 우수한 열전도 특성을 갖는 층상형 AlN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 AlN 나노시트에 관한 것이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

H01L 23/142 (2013.01)

H01L 41/081 (2013.01)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 2017087257

부처명 과학기술정보통신부

연구관리전문기관 한국연구재단

연구사업명 원천기술개발사업

연구과제명 결정구조 차원 계층 설계를 통한 벌크소재의 2차원 소재화 기술 개발

기여율 1/1

주관기관 연세대학교 산학협력단

연구기간 2017.12.18 ~ 2018.03.17

명세서

청구범위

청구항 1

(1) Ca 전구체 또는 Ca 분말, Al 전구체 또는 Al 분말, 및 N 전구체를 포함하는 혼합물을 열처리한 후 냉각하여 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖는 화학식 $Ca_3Al_2N_4$ 로 표시되는 층상형 화합물을 수득하는 단계; 및

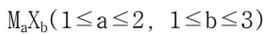
(2) 상기 층상형 화합물의 결정구조 변화 없이 상기 층상형 화합물에 포함된 Ca 이온을 선택적으로 제거할 수 있는 염 및 상기 염을 용해시킬 수 있는 용매를 포함하는 혼합용액으로 상기 층상형 화합물을 처리하는 단계; 를 포함하는 층상형 AlN의 제조 방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 염은 하기 화학식 1로 표시되는 층상형 AlN의 제조 방법:

<화학식 1>



상기 화학식 1에서 M은 Al, Mg, 및 Mn 중에서 선택된 어느 하나, X는 Cl, F 및 I 중에서 선택된 어느 하나다.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 용매는 탈이온수, 테트라하이드로퓨란 및 다이클로로메탄 중에서 선택된 적어도 어느 하나인 층상형 AlN의 제조 방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 (1)단계의 열처리는 1000~1200℃에서 80~200시간 동안 수행되는 층상형 AlN의 제조 방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 (1)단계의 냉각은 0.5~3℃/시간 또는 10~15℃/시간의 감온 속도로 수행되는 층상형 AlN의 제조 방법.

청구항 6

공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖는 층상형 AlN.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 공간군이 C2/2인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 Cu-K α 선을 사용하는 분말 X선 회절법에 의해 얻어지는 X선 회절도에 있어서, 13.54 \pm 0.2, 16.68 \pm 0.2, 20.79 \pm 0.2, 21.25 \pm 0.2, 26.85 \pm 0.2, 27.43 \pm 0.2, 31.46 \pm 0.2 및 32.33 \pm 0.2의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 33.04 \pm 0.2, 35.77 \pm 0.2, 37.7 \pm 0.2, 49.48 \pm 0.2, 59.02 \pm 0.2, 65.54 \pm 0.2 및 70.95 \pm 0.2의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않는 층상형 AlN.

청구항 8

제6항에 있어서,

상기 공간군이 P2/c인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 Cu-K α 선을 사용하는 분말 X선 회절법에 의해 얻어지는 X선 회절도에 있어서, 9.94 \pm 0.2, 18.24 \pm 0.2, 18.73 \pm 0.2, 18.95 \pm 0.2, 19.96 \pm 0.2, 24.24 \pm 0.2, 25.21 \pm 0.2 및 30.11 \pm 0.2의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 33.04 \pm 0.2, 35.77 \pm 0.2, 37.7 \pm 0.2, 49.48 \pm 0.2, 59.02 \pm 0.2, 65.54 \pm 0.2 및 70.95 \pm 0.2의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않는 층상형 AlN.

청구항 9

제6항에 따른 층상형 AlN로부터 박리되고, 비정질 결정구조를 갖는 AlN 나노시트.

청구항 10

제9항에 있어서,

상기 AlN 나노시트의 두께는 300 nm 이하인 AlN 나노시트.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 층상형 AlN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 AlN 나노시트에 관한 것이며, 더욱 상세하게는 종래의 벌크형 AlN와 달리 2차원 결정 구조를 갖고, 박리성이 우수하여 나노시트의 형태로 박리하기 용이하며, 우수한 열전도 및 압전 특성을 갖는 층상형 AlN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 AlN 나노시트에 관한 것이다.

배경 기술

[0003] 그래핀을 비롯한 다양한 초박막 이차원(2D) 재료들은 새로운 물리적, 화학적, 기계적 및 광학적 특성을 바탕으로 다양한 분야에서 활발히 연구가 되고 있다. 이러한 저차원의 소재는 기존의 벌크 소재가 가지지 못하는 획기적인 신기능이 기대되고 기존소재를 대체할 차세대 미래 소재로서 가능성이 매우 크다.

[0004] 기존 2D 소재에 대한 연구는 층간(interlayer)의 결합력이 약한 반데르발스 결합을 물리적 및 화학적 방법으로 분리하는 Top-down법, 기상증착법에 기반한 대면적 박막을 성장시키는 Bottom-up법을 기반으로 진행되고 있다. 특히 Top-down법은 박리(exfoliation) 대상 물질의 모상(pristine)이 반드시 2차원적 층상결정구조를 가져야 하므로 밴드갭이 없는 그래핀, 전하 이동도가 낮은 층상 금속산화물/질화물, 전하이동도/전기전도도가 낮은 전이 금속 칼코겐화합물 등 연구 대상이 매우 제한적인 문제점이 있다.

[0005] 종래 연구 방법의 한계로 인해 2D 소재는 그래핀이나 전이금속 칼코겐화합물 등의 물질을 대상으로 매우 제한적으로 연구가 진행되었으며, 이는 본질적으로 저차원 소재의 개발 가능 여부가 사용하고자 하는 원소의 종류에 따라 제한된다는 점에서 한계를 가지며 층상구조가 아닌 무수히 많은 3D 벌크 소재의 저차원 미래 소재 개발에

는 적합하지 않은 방법이다.

[0006] 한편, 질화 알루미늄(AlN)은 알루미늄의 열전도도 대비 10배 이상의 열전도도(319W/m K)를 갖고, 열팽창계수가 알루미늄보다 상대적으로 낮고, 전기절연성 및 기계적 강도가 우수한 특성이 있다. 이러한 AlN을 2차원 소재로 제조할 경우 상술한 특성들이 향상될 수 있어 고열전도세라믹스의 반도체 기판이나 부품에 응용될 수 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0008] (특허문헌 0001) 대한민국등록특허 제10-0954722호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0009] 본 발명은 종래의 벌크형 AlN과 달리 2차원 결정 구조를 갖고, 박리성이 우수하여 나노시트의 형태로 박리하기 용이하며, 우수한 열전도 및 압전 특성을 갖는 층상형 AlN 및 이로부터 박리된 AlN 나노시트를 제공하는데 목적이 있다.

과제의 해결 수단

[0011] 상술한 과제를 해결하기 위하여 본 발명은 (1) Ca 전구체 또는 Ca 분말, Al 전구체 또는 Al 분말, 및 N 전구체를 포함하는 혼합물을 열처리한 후 냉각하여 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖는 화학식 $Ca_3Al_2N_4$ 로 표시되는 층상형 화합물을 수득하는 단계 및 (2) 상기 층상형 화합물의 결정구조 변화 없이 상기 층상형 화합물에 포함된 Ca 이온을 선택적으로 제거할 수 있는 염 및 상기 염을 용해시킬 수 있는 용매를 포함하는 혼합용액으로 상기 층상형 화합물을 처리하는 단계를 포함하는 층상형 AlN의 제조 방법을 제공한다.

[0012] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 염은 하기 화학식 1로 표시될 수 있다.

[0013] <화학식 1>

[0014] $M_aX_b (1 \leq a \leq 2, 1 \leq b \leq 3)$

[0015] 상기 화학식 1에서 M은 Al, Mg, 및 Mn 중에서 선택된 어느 하나, X는 Cl, F 및 I 중에서 선택된 어느 하나다.

[0016] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 용매는 탈이온수, 테트라하이드로퓨란 및 다이클로로메탄 중에서 선택된 적어도 어느 하나일 수 있다.

[0017] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 (1)단계의 열처리는 1000~1200℃에서 80~200시간 동안 수행될 수 있다.

[0018] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 (1)단계의 냉각은 0.5~3℃/시간 또는 10~15℃/시간의 감온 속도로 수행될 수 있다.

[0019] 또한 본 발명은 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖는 층상형 AlN을 제공한다.

[0020] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 공간군이 C2/2인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 Cu-K α 선을 사용하는 분말 X선 회절법에 의해 얻어지는 X선 회절도에 있어서, 13.54±0.2, 16.68±0.2, 20.79±0.2, 21.25±0.2, 26.85±0.2, 27.43±0.2, 31.46±0.2 및 32.33±0.2의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 33.04±0.2, 35.77±0.2, 37.7±0.2, 49.48±0.2, 59.02±0.2, 65.54±0.2 및 70.95±0.2의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다.

[0021] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 공간군이 P2/c인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 Cu-K α 선을

사용하는 분말 X선 회절법에 의해 얻어지는 X선 회절도에 있어서, 9.94 ± 0.2 , 18.24 ± 0.2 , 18.73 ± 0.2 , 18.95 ± 0.2 , 19.96 ± 0.2 , 24.24 ± 0.2 , 25.21 ± 0.2 및 30.11 ± 0.2 의 2θ 값에서 피크를 갖고, 33.04 ± 0.2 , 35.77 ± 0.2 , 37.7 ± 0.2 , 49.48 ± 0.2 , 59.02 ± 0.2 , 65.54 ± 0.2 및 70.95 ± 0.2 의 2θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다.

[0022] 또한 본 발명은 본 발명에 따른 층상형 AlN로부터 박리되고, 비정질 결정구조를 갖는 AlN 나노시트를 제공한다.

[0023] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 AlN 나노시트의 두께는 300 nm 이하일 수 있다.

발명의 효과

[0025] 본 발명에 따른 층상형 AlN은 종래의 벌크형 AlN과 달리 2차원 결정 구조를 갖고, 박리성이 우수하여 나노시트의 형태로 박리하기 용이하며, 우수한 열전도 및 압전 특성을 갖기 때문에 고열전도세라믹스의 반도체 기관, 다이리스터의 기관이나 압전 소자에 널리 활용될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0027] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 층상형 AlN 제조 방법에 대한 모식도이다.

도 2는 비교예1의 3D 벌크형 AlN, 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 및 실시예1의 층상형 AlN의 XRD 분석 결과를 도시한 그래프이다.

도 3a는 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 SEM 이미지이다.

도 3b는 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 SEM 이미지이다.

도 3c는 실시예1의 층상형 AlN의 SEM 이미지이다.

도 4는 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0028] 이하, 첨부한 도면을 참고로 하여 본 발명의 실시예에 대하여 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있도록 상세히 설명한다. 본 발명은 여러 가지 상이한 형태로 구현될 수 있으며 여기에서 설명하는 실시예에 한정되지 않는다.

[0029] 본 발명에 따른 층상형 AlN의 제조 방법에 대하여 설명한다.

[0030] 본 발명에 따른 층상형 AlN의 제조 방법은 기존 3D 구조의 벌크형 AlN를 이차원 구조로 제조할 수 있으며, 기존 벌크형 AlN과는 달리 박리가 용이하고, 우수한 열전도 특성을 갖는 층상형 AlN를 제조할 수 있다.

[0031] 먼저 (1)단계로서, Ca 전구체 또는 Ca 분말, Al 전구체 또는 Al 분말, 및 N 전구체를 포함하는 혼합물을 열처리한 후 냉각하여 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖고 화학식 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 로 표시되는 층상형 화합물을 수득 한다.

[0032] 상기 Ca 전구체 또는 Ca 분말, Al 전구체 또는 Al 분말, 및 N 전구체는 각각 독립적으로 혼합될 수 있고, 상기 N 전구체는 상기 Ca 전구체 또는 Al 전구체와 동일한 물질로 상기 혼합물에 포함될 수 있다.

[0033] 구체적으로 상기 N 전구체는 N 이온을 포함하는 화합물일 수 있고, 상기 Ca 전구체는 Ca 이온을 포함하는 화합물일 수 있으며, 상기 N 전구체와 Ca 전구체는 Ca 및 N 원소를 포함하는 화합물로서 동일한 물질일 수 있으며, 일례로 Ca_3N_2 일 수 있으나 이에 제한되지 않는다. 상기 Al 전구체는 Al 이온을 포함하는 화합물일 수 있으며, 일례로 AlN일 수 있으나 이에 제한되지 않는다.

[0034] 상기 혼합물은 반응용기에 봉입한 후 열처리될 수 있으며, 상기 반응용기 내부는 불활성 기체 분위기 또는 진공 분위기로 유지될 수 있다.

[0035] 또한, 상기 반응용기의 소재는 일례로 알루미늄, 폴리브덴, 텅스텐 또는 석영일 수 있으나, 시료와 반응하지 않고, 고온에서 파손되지 않는 물질이라면 소재에 제한 없이 사용할 수 있다.

- [0036] 도 1에 도시된 바와 같이 (1) 단계를 통해 준비되는 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 는 3D 결정 구조의 AlN와 상이한 2D 결정 구조를 가지며, 후술되는 (2)단계에서 상기 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 Ca 이온을 선택적으로 제거하여 상기 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 결정 구조 변화 없이 층상형 AlN를 제조할 수 있다.
- [0037] 상기 열처리는 1000~1200℃에서 80~200시간 동안 수행될 수 있다.
- [0038] 만일, 상기 열처리가 1000℃ 미만으로 수행될 경우, 상기 혼합물의 소결 반응이 완료되지 않아 미반응된 원재료가 잔류할 수 있고, 이에 따라 제조되는 층상형 화합물의 수율이 저하되는 등의 문제가 있을 수 있다. 또한, 상기 열처리가 1200℃를 초과하여 수행될 경우, Ca 이온의 기화로 소결 반응시 사용되는 반응 용기가 파손되거나, 제조되는 층상형 화합물의 수율이 저하되는 등의 문제가 있을 수 있다.
- [0039] 만일, 상기 열처리가 80시간 미만으로 수행될 경우, 상기 혼합물의 소결 반응이 완료되지 않아 미반응된 원재료가 잔류할 수 있고, 이에 따라 제조되는 층상형 화합물의 수율이 저하되는 등의 문제가 있을 수 있다. 또한, 상기 열처리가 200시간을 초과하여 수행될 경우, 제조 공정 시간이 불필요하게 증가할 우려가 있다.
- [0040] 상기 (1)단계에서 열처리한 후 냉각하는 과정은 층상형 화합물의 결정화를 위해 필요하며, 냉각 속도에 따라 결정의 단결정 크기가 변할 수 있다.
- [0041] 상기 냉각은 10~15℃/시간 또는 0.5~3℃/시간의 감온 속도로 수행될 수 있으며, 상기 감온 속도가 10~15℃/시간일 경우 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 를 다결정화할 수 있다. 상기 감온 속도가 0.5~3℃/시간일 경우 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 를 단결정화할 수 있으며, 상기 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 에 포함되는 Ca 이온 제거 후에도 층상형 AlN의 단결정 크기는 유지될 수 있다. 상기 층상형 AlN의 단결정 크기가 커질수록 입자의 그레인 바운더리(grain boundary)가 감소할 수 있고, 층상형 InAs 박리시 박리되는 InAs 나노시트의 종횡비(aspect ratio)가 증가할 수 있다.
- [0042] 만일 상기 감온 속도가 0.5℃/시간 미만일 경우, Ca 이온의 기화로 인해 제조되는 물질의 조성 변화가 발생할 수 있고, 상기 감온 속도가 3℃/시간을 초과할 경우, 제조되는 층상형 화합물이 다결정화될 수 있다.
- [0043] 다음으로, (2)단계로서 상기 (1)단계에서 제조된 층상형 화합물을 상기 층상형 화합물에 포함된 Ca 이온을 선택적으로 제거할 수 있는 염 및 상기 염을 용해시킬 수 있는 용매를 포함하는 혼합용액으로 처리하여 상기 층상형 화합물의 결정구조 변화 없이 층상형 AlN를 제조한다.
- [0044] 상기 염은 상기 층상형 화합물에 포함된 알칼리 금속 이온과 용이하게 반응하기 위하여 전기음성도가 큰 음이온 및 상기 알칼리 금속 이온과 Al 이온 사이의 전기음성도 값을 갖는 양이온을 포함할 수 있다.
- [0045] 상기 염은 하기 화학식 1로 표시될 수 있으며, 상기 염은 상기 알칼리 금속 이온과 Al 이온 사이의 전기음성도 값을 갖는 양이온으로서 M 및 전기음성도가 큰 Cl 이온으로 구성된다.
- [0046] <화학식 1>
- [0047] $\text{M}_a\text{X}_b(1 \leq a \leq 2, 1 \leq b \leq 3)$
- [0048] 상기 화학식 1에서 M은 Al, Mg, 및 Mn 중에서 선택된 어느 하나, X는 Cl, F 및 I 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.
- [0049] 또한 상기 용매는 탈이온수, 테트라하이드로퓨란 및 다이클로로메탄 중에서 선택된 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.
- [0050] 상기 염은 상기 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 Ca 이온 제거 효율을 증가시키고 Al이온의 제거를 방지하기 위하여 상기 용매에 용해될 수 있는 한 높은 농도로 상기 혼합용액에 포함될 수 있다.
- [0051] 상기 염은 상기 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 Ca 이온을 제거하기에 충분한 양으로 사용될 수 있으나, 바람직하게는 상기 혼합용액 내 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 및 염은 1:1 내지 1:3의 몰비율로 포함될 수 있다. 만일 상기 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 및 염의 몰비율이 1:1 미만일 경우, 상기 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 Ca 이온이 목적하는 수준으로 제거되지 않을 수 있고, 만일 상기 몰비율이 1:3을 초과할 경우 상기 염이 상기 혼합용액에 용해되지 않아 침전물이 발생하는 등의 문제가 있을 수 있다.
- [0052] 또한, 상기 (2)단계는 상기 Ca 이온의 제거 반응이 원활하게 일어날 수 있는 온도에서 수행될 수 있으며, 상기

혼합용액의 조성에 따라 온도가 달라질 수 있으나, 바람직하게는 20 ℃ 이상의 온도, 더욱 바람직하게는 20~60 ℃의 온도에서 수행될 수 있다. 만일 20℃ 미만에서 수행될 경우, Ca 이온이 목적하는 수준으로 제거되지 않을 수 있고, 60℃를 초과하는 온도에서 수행될 경우 제조되는 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 층상형 구조가 붕괴될 수 있다. 또한, 20~60℃의 온도에서 수행될 경우 제조되는 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 층상형 구조를 유지하면서 알칼리 금속 이온 제거율이 우수할 수 있다.

[0053] 또한, 상기 (2)단계는 상기 혼합용액의 조성, Ca 이온의 제거율에 따라 복수회 실시할 수 있으나, 제조되는 층상형 AlN의 층상형 구조를 유지하기 위해 1회 실시하는 것이 바람직하다.

[0054] 또한, 상기 (2)단계를 수행한 후 층상형 AlN외에 Ca 이온과 상기 염이 반응하여 생성된 반응물, 일예로 염화칼슘이 존재할 수 있으며, 이를 제거하기 위해 상기 (2)단계를 통해 수득된 분말을 용매로 세척할 수 있다.

[0055] 상기 반응물을 제거하기 위한 용매는 염화칼슘에 대한 용해도가 있는 용매라면 제한없이 사용될 수 있으며 일예로 물, 탈이온수 및 에탄올 중에서 선택된 적어도 어느 하나일 수 있다.

[0057] 다음으로, 본 발명의 층상형 AlN에 대하여 설명한다.

[0058] 본 발명에 따른 층상형 AlN는 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 가지며, 이는 기존 3D 벌크형 AlN와 상이한 결정 구조로서 박리성이 우수하여 나노시트의 형태로 박리하기 용이하며, 우수한 열전도 특성을 가질 수 있다.

[0059] Cu-K α 선을 사용하는 분말 X선 회절법에 의해 얻어지는 X선 회절도에 있어서, 상기 공간군이 C2/2인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 13.54 ± 0.2 , 16.68 ± 0.2 , 20.79 ± 0.2 , 21.25 ± 0.2 , 26.85 ± 0.2 , 27.43 ± 0.2 , 31.46 ± 0.2 및 32.33 ± 0.2 의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 33.04 ± 0.2 , 35.77 ± 0.2 , 37.7 ± 0.2 , 49.48 ± 0.2 , 59.02 ± 0.2 , 65.54 ± 0.2 및 70.95 ± 0.2 의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다. 또한, 상기 공간군이 P2/c인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 9.94 ± 0.2 , 18.24 ± 0.2 , 18.73 ± 0.2 , 18.95 ± 0.2 , 19.96 ± 0.2 , 24.24 ± 0.2 , 25.21 ± 0.2 및 30.11 ± 0.2 의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 33.04 ± 0.2 , 35.77 ± 0.2 , 37.7 ± 0.2 , 49.48 ± 0.2 , 59.02 ± 0.2 , 65.54 ± 0.2 및 70.95 ± 0.2 의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다.

[0060] 다음으로, 본 발명의 AlN 나노시트에 대하여 설명한다.

[0061] 본 발명에 따른 AlN 나노시트는 본 발명에 따른 층상형 AlN로부터 박리되어 수득할 수 있으며, 비정질 결정구조를 갖는다.

[0062] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 AlN 나노시트는 300nm 이하의 두께를 가질 수 있으며, 만일 상기 두께가 300nm를 초과할 경우 AlN 나노시트의 표면적이 저하되어 열전도 및 압전 특성이 저하되거나 상기 AlN 나노시트의 적층이 어려워 질 수 있다.

[0063] 상기 층상형 AlN의 박리 방법은 당업계에서 공지된 층상형 물질의 박리 방법을 사용할 수 있으며, 일예로 초음파에 의한 에너지로 박리하는 방법, 용매의 침입에 의한 박리 방법, 테이프를 이용한 박리 방법 및 접착성 표면을 가진 물질을 이용한 박리 방법 중 어느 하나의 방법을 사용할 수 있다.

[0064] 한편, 상술한 본 발명에 따른 층상형 AlN 및 AlN 나노시트는 우수한 열전도 및 압전 특성을 갖기 때문에 고열전도세라믹스의 반도체 기관, 다이리스터의 기관이나 압전 소자에 활용될 수 있다.

[0065] 본 발명에 따른 층상형 AlN 및 AlN 나노시트가 압전 소자에 활용될 경우, 압전 소자에 포함되는 압전체로서 본 발명에 따른 층상형 AlN 또는 AlN 나노시트가 포함되어 압전 특성이 우수할 수 있다. 상기 압전 소자에 포함되는 압전체 이외의 구성은 당업계에서 공지된 구성을 채용할 수 있어서 본 발명은 이에 대한 구체적인 설명은 생략한다.

[0066] 또한, 본 발명에 따른 층상형 AlN 및 AlN 나노시트는 열전도 특성이 우수하기 때문에 고열전도세라믹스의 반도체 기관 또는 다이리스터의 기관에 활용될 경우, 열전도 특성이 우수할 수 있다. 상기 기관 이외의 구성은 당업계에서 공지된 구성을 채용할 수 있어서 본 발명은 이에 대한 구체적인 설명은 생략한다.

[0068] 이상에서 본 발명의 일 실시예에 대하여 설명하였으나, 본 발명의 사상은 본 명세서에 제시되는 실시예에 제한되지 아니하며, 본 발명의 사상을 이해하는 당업자는 동일한 사상의 범위 내에서, 구성요소의 부가, 변경,

삭제, 추가 등에 의해서 다른 실시 예를 용이하게 제안할 수 있을 것이나, 이 또한 본 발명의 사상범위 내에 든다고 할 것이다.

[0069] **(준비예1) 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 제조**

[0070] 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 합성을 위해 Ca_3N_2 분말과 Al분말을 혼합한 후 진공 분위기의 퀴츠 튜브에 봉입하였다. 시료가 담긴 퀴츠 튜브를 1050℃에서 100시간 동안 열처리하였다. 이후 재 결정화를 위해 2℃/시간의 감온 속도로 냉각하여 고 순도의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 단결정을 수득하였다.

[0072] **(실시예1) 층상형 AlN 제조**

[0073] 준비예1에서 제조된 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 를 탈이온수, 테트라하이드로푸란 및 AlCl_3 와 혼합하여 상기 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 에서 Ca 이온을 제거하였으며, 이를 통해 층상형 AlN를 제조하였다.

[0075] **(실시예3) AlN 나노시트 제조**

[0076] 실시예1에서 제조된 층상형 AlN를 테이프로 박리하여 AlN 나노시트를 제조하였다.

[0078] **(비교예1) 3D 벌크형 AlN**

[0079] 상용 제품인 3D 벌크형 AlN(시그마알드리치)를 준비하였다.

[0082] **(실험예1) XRD 분석**

[0083] 비교예1의 3D AlN, 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 및 실시예1의 층상형 AlN에 대하여 XRD 분석을 실시하였으며, 그 결과를 도 2에 도시하였다.

[0084] 도 2를 참조하면 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ (준비예1)는 공간군이 C2/2 및 P2/c인 단사정계 결정구조를 갖는 것을 확인할 수 있다.

[0085] 또한, 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 에서 Ca 이온을 제거한 층상형 AlN(실시예1)은 공간군이 C2/2 및 P2/c인 단사정계 결정구조를 갖는 것을 확인할 수 있고 이는 3D 구조의 벌크형 AlN과는 상이한 결정 구조이다.

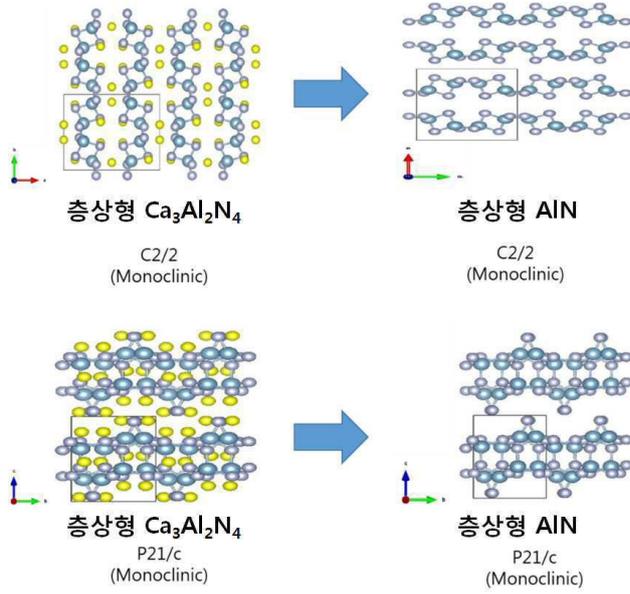
[0087] **(실험예2) SEM 분석**

[0088] 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 및 실시예1의 층상형 AlN에 대하여 SEM 이미지를 촬영하였으며, 그 결과를 도 3a 및 3c에 도시하였다.

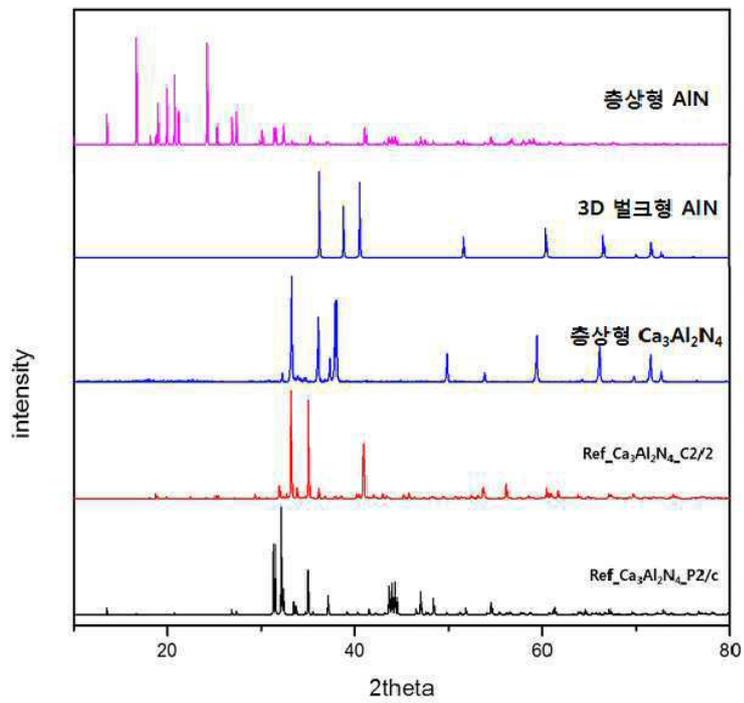
[0089] 도 3a 및 도 3c를 참조하면, 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 Ca 이온 제거 후 제조된 AlN가 층상형 구조를 갖는 것을 확인할 수 있다.

도면

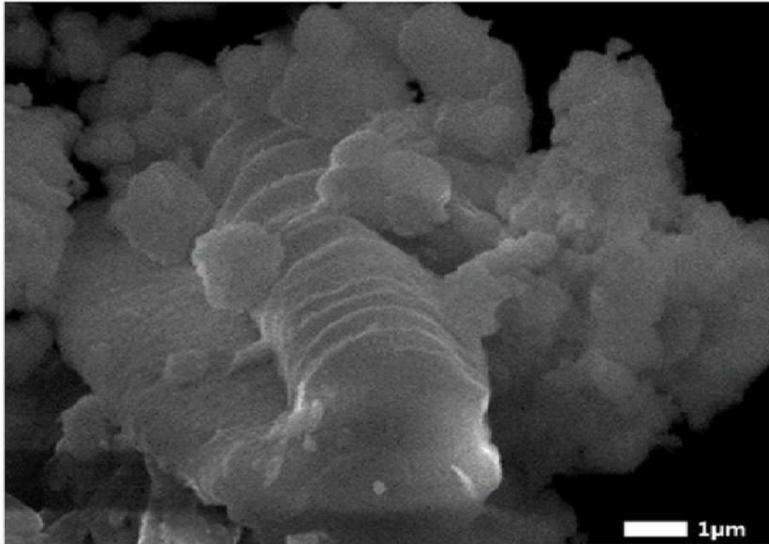
도면1



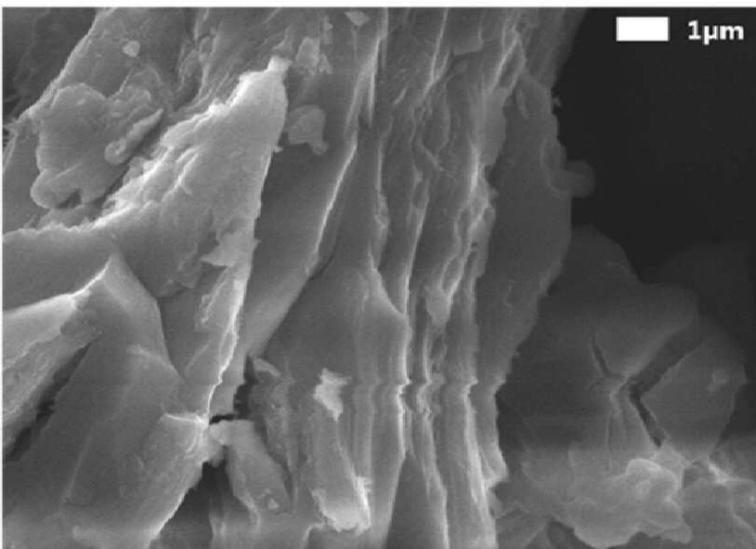
도면2



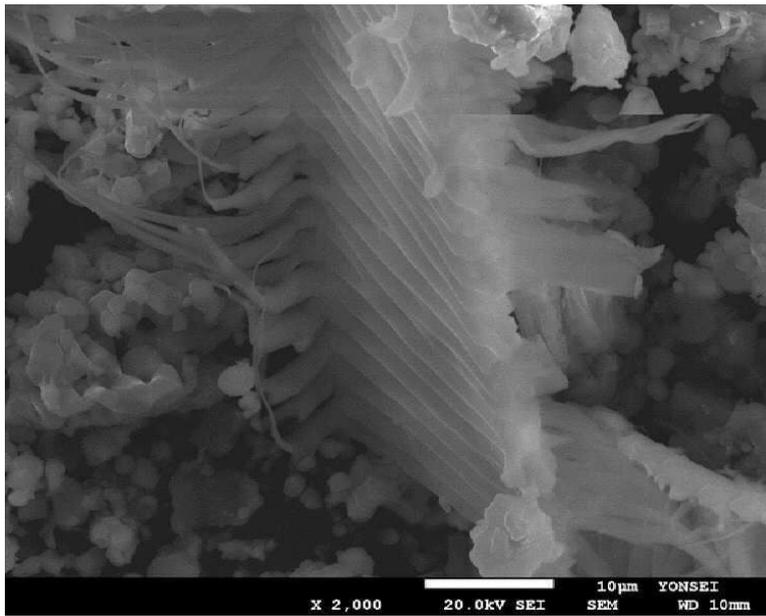
도면3a



도면3b



도면3c



도면4

