

## 알루미늄(III) 착물로부터의 질화알루미늄 분말의 합성

安相慶 · 鄭宇軾\* · 金得中†

영남대학교 공과대학 공업화학과

†대한중석공업주식회사 세라믹연구소

(1992. 6. 24 접수)

## Synthesis of Aluminum Nitride Powder from Aluminum(III) Complex

Sang-Kyeung Ahn, Woo-Sik Jung\*, and Deug-Joong Kim†

Department of Industrial Chemistry, College of Engineering,

Yeungnam University, Gyongsan 712-749, Korea

†Ceramics Laboratory, Korea Tungsten Mining Co., Ltd,

Gyongsangbukdo 711-860, Korea

(Received June 24, 1992)

최근에 전자산업분야에서는 보다 작고, 보다 믿을 수 있는 집적회로와 전력공급을 위한 고전압 장치의 필요성이 증가함에 따라 다음과 같은 성질을 가진 질화알루미늄(AIN)이 차세대 기판재료로서 많은 관심을 끌고 있다: 높은 열전도성, 높은 전기절연성, 낮은 유전상수 및 유전손실, 실리콘과 비슷한 열팽창계수, 무독성 등, 또한 질화알루미늄은 공유결합 물질로서 밀도가 낮고, 열적·기계적 특성이 우수하여 여러가지 구조물 분야에서의 응용가능성이 높다<sup>1,2</sup>. 지금까지 알려진 질화알루미늄 분말의 합성법 중에서 공업적으로 사용되고 있는 합성법을 보면, 금속 알루미늄을 고온에서 질소 혹은 암모니아 기체와 직접적으로 질화반응시키고 직접질화법(direct nitridation)과  $\alpha$ -알루미나와 탄소의 혼합물을 질소 분위기에서 고온 반응시키는 열탄소환원질화법(carbothermal reduction and nitridation)이다. 직접질화법은 열탄소환원질화법보다 질화반응온도가 낮지만, 합성된 질화알루미늄의 입자가 크기 때문에 소결을 시키기 위해서는 분말의 분쇄과정이 필요하다. 이에 반하여 열탄소환원질화법에서는 열역학적으로 매우 안정한  $\alpha$ -알루미나를 사용하기 때문에 1700°C 이상의 높은 질화반응온도가 요구되며,  $\alpha$ -알루미나

와 탄소분말과의 균질혼합, 잔류탄소의 하소 등과 같은 추가적인 공정과정이 요구된다. 본 단신에서는 종래의 열탄소환원질화법의 조건을 완화시킬 수 있는 새로운 전구물질, 즉 알루미늄(III) 착물을 이용한 질화알루미늄 분말의 합성에 대한 연구결과를 보고한다.

전구물질  $\text{Al}(\text{OH})(\text{C}_4\text{H}_9\text{O}_4) \cdot 1/4\text{H}_2\text{O}$  착물(이후 이 착물을 AS로 칭한다)은 약산성인 수용액에서 알루미늄(III) 염인  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (Junsei Chemical Co.)와 호박산(Junsei Chemical Co.)으로부터 합성했다<sup>3</sup>. 이 착물의 적외선 스펙트럼(BOMEN FT-IR Spectrophotometer)은 Fig. 1에 나와 있다. 3687과 3408  $\text{cm}^{-1}$ 의 흡수봉우리는 각각 배위된 수산화기와 결정수의 O-H 신축 진동에 기인한 것이다<sup>4</sup>. Al(III) 이온에 배위되어 있는 호박산 이온의 C=O 비대칭 신축진동주파수는 1602  $\text{cm}^{-1}$ 로 호박산의 C=O 신축진동주파수보다 약 100  $\text{cm}^{-1}$  정도 더 낮다. 결정수의 수는 일정량의 착물 AS를 1200°C의 공기 중에서 태워 얻은  $\alpha$ -알루미나의 양으로부터 결정했다.

Fig. 2는 탄소분말을 가하지 않고 착물 AS만을 흑연도가니에 담은 다음 SiC 발열체를 이용한 전기로에 넣고, 반응온도를 1400°C로 하고 5시간 동안

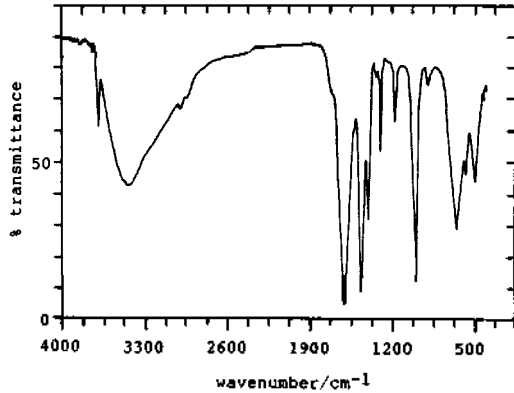


Fig. 1. Infrared spectrum of  $\text{Al(OH)(C}_4\text{H}_4\text{O}_4\text{)} \cdot 1/4\text{H}_2\text{O}$  complex.

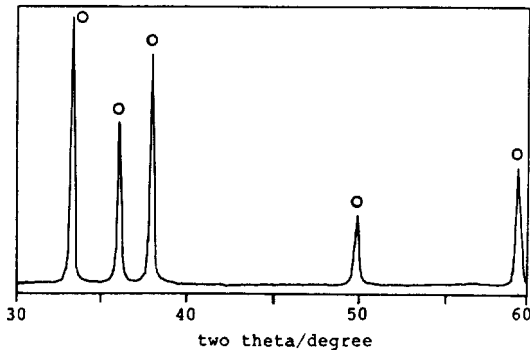


Fig. 2. X-ray diffraction pattern of the powder obtained by nitridation of  $\text{Al(OH)(C}_4\text{H}_4\text{O}_4\text{)} \cdot 1/4\text{H}_2\text{O}$  complex: (O), AlN.

질소분위기(유속 50 ml/분)에서 질화반응을 시켜 얻은 분말의 X-선 회절(SIEMENS D-500 Diffractometer) 결과이다. 그림에서 보는 바와 같이 거의 100%의 질화알루미늄이 얻어졌음을 알 수 있다.

Fig. 3은 합성한 질화알루미늄 분말을 에탄올에 분산시켜 얻은 투과전자현미경 사진(Hitachi H-600 Electron Microscope)이다. 분말의 용집이 약간 보이지만 입자의 모양이 구형에 가까우며, 그것의 평균 입자지름이 약 30~50 nm 정도임을 알 수 있다.  $\alpha$ -알루미나를 전구물질로 하는 열탄소환원질화법에 의해 공업적으로 합성되는 질화알루미늄 분말의 평균 입자지름은 대개 1  $\mu\text{m}$  내외이다. 본 연구에서 합성된 이런 초미세한 질화알루미늄 분말은 알루미늄(III)의 폴리이미노알란 화합물,  $[\text{AlH(NR)}_2]_n$ 을 850  $^\circ\text{C}$  암모니아 분위기에서 열분해시킴으로써 얻어지



Fig. 3. TEM micrograph of the powder obtained by nitridation of  $\text{Al(OH)(C}_4\text{H}_4\text{O}_4\text{)} \cdot 1/4\text{H}_2\text{O}$  complex (bar = 100 nm).

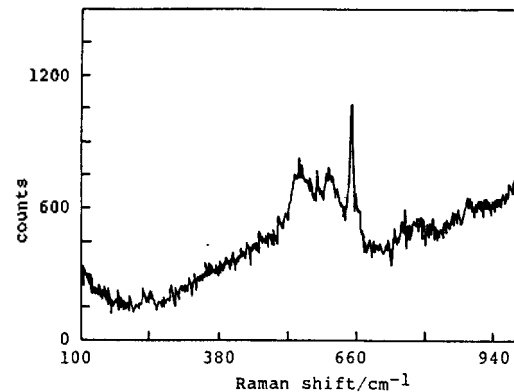


Fig. 4. Raman spectrum of the powder obtained by nitridation of  $\text{Al(OH)(C}_4\text{H}_4\text{O}_4\text{)} \cdot 1/4\text{H}_2\text{O}$  complex.

기도 한다<sup>5</sup>. 그 전구물질은 금속알루미늄을 일차아민이 들어있는 전해질용액에서 전기분해시켜 합성한다. 합성한 질화알루미늄 분말의 산소 및 질소의 함량을 측정된 결과(LECO TC-1360 Oxygen/Nitrogen Determinator) 각각 2.59 및 30.99%로 나타났다. 산소의 함량이 다소 높은 것은 합성된 분말의 입자가 매우 작아 질화알루미늄이 부분적으로 산화되었기 때문으로 보인다<sup>6</sup>.

Fig. 4는 합성한 분말의 라만스펙트럼(514.5 nm  $\text{Ar}^+$  레이저; 출력, 140 mW)이다. 분말형태의 시료이기 때문에 빛의 산란효과가 커서 잡음이 많은 스펙트럼이지만, 550, 608, 652  $\text{cm}^{-1}$ 의 세개의 봉우

리가 관측되었다. 이들 봉우리들 중에서 608와 652  $\text{cm}^{-1}$ 의 라만이동값은 단결정의 질화알루미늄의 편광측정에서 편광면회전자와 선광계의 배치를  $x(yx)y$ 로 했을 때 나타난 두 봉우리의 라만이동값(610과 655  $\text{cm}^{-1}$ )과 잘 일치한다. 현재 반응계의 질화반응 메카니즘과 얻어진 분말에 대한 소결성에 관한 연구가 진행중에 있다.

본 연구는 한국과학재단의 지원을 받아 이루어진 것으로 연구비를 지원해 준 한국과학재단의 감사드립니다. 또한, 시료의 라만스펙트럼을 측정하여 준 한국표준과학연구원 이 김동호 박사님의 호의에 감사드립니다.

#### 인 용 문 헌

1. L. M. Sheppard, *Ceramic Bulletin*, **69**, 1801 (1990).
2. D. D. Merchant and T. E. Nemecek, "Advances

in Ceramics, Vol. 26: Ceramic Substrates and Packages for Electronic Applications," pp. 19, Edited by M. F. Yan, K. Niwa, H. M. O'Bryan, Jr., and W. S. Young, The American Ceramic Society, Westerville, U.S.A., 1989.

3. (a) A. Vogel, "Vogel's Textbook of Quantitative Inorganic Analysis including Elementary Instrumental Analysis," 4th ed., pp. 449, Longman, U.K., 1978; (b) 최규원, 정성분석, pp. 223, 보진제, 1973.
4. K. Nakamoto, "Infrared and Raman Spectra of Inorganic and Coordination Compounds," 3rd ed., John Wiley and Sons, New York, 1978.
5. M. M. Seibold and C. Rüssel, *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**, 1503 (1989).
6. D. Suryanarayana, *J. Am. Ceram. Soc.*, **73**, 1108 (1990).
7. O. Brafman, G. Lengyel, S. S. Mitra, P. J. Gielisse, J. N. Plendl, and L. C. Mansur, *Solid State Commun.*, **6**, 523 (1968).