

출원신청 > PCT국제출원 > 온라인제출

온라인제출 PCT-SAFE로 작성된 PCT국제출원서를 온라인으로 제출할 수 있습니다.



PCT온라인제출결과안내

- 온라인 제출 결과 아래와 같이 접수되었습니다.
- 제출결과조회**를 통해 접수하신 서류에 대한 접수결과 및 방식심사 진행상태를 조회하실 수 있습니다.
- 수수료는 서식작성기에서 입력한 수수료 금액이며, 제출결과조회 화면에서 특허청 전산시스템에서 계산한 수수료를 조회할 수 있습니다.

접수일시: 2019 년 06 월 10일

| 접수번호 | 국제출원번호 | 참조기호 | 서류명 | 수수료 |
|---------------------|-------------------|------------|-------|-----|
| 6-1-2019-0076174-15 | PCT/KR2019/006947 | PCT5040226 | 국제출원서 | 무 |

- 이용방법안내**
- 제출하신 출원서류는 압축파일(ZIP)의 손상, 전자서명 오류, 바이러스 감염 등 "물리적 오류"와 "명백한 반려사유"에 해당할 경우 접수가 반려될 수 있습니다.
 - 출원에 따른 수수료는 접수일로부터 다음날까지 동봉된 납입영수증에 성명, 납부자번호 등을 기재하시어 가까운 우체국 또는 은행에 납부하여야 합니다.
*납부자번호 : 0131(기관코드) + 접수번호
 - 기타 문의사항이 있으시면 특허고객상담센터(1544-8080)에 문의하시거나 특허청 홈페이지(www.kipo.go.kr)를 참고하시기 바랍니다.

PCT 출원서

(전자적 형태가 원본)

| | | |
|------------|--|---|
| 0 | 수리관청 전용 | |
| 0-1 | 국제출원번호 | |
| 0-2 | 국제출원일자 | |
| 0-3 | 수리관청 명칭 및 "PCT 국제출원" | |
| 0-4 | 서식 PCT/RO/101 - PCT 출원서 | |
| 0-4-1 | 우측에 기재된 바와 같이 작성되었다. | PCT-SAFE 버전 3.51.083.259 MT/FOP 20180701/0.20.5.24 |
| 0-5 | 신청 아래 서명인은 본 국제 출원서가 특허협력조약에 의해 처리될 것을 청구합니다. | |
| 0-6 | 출원인이 지정한 수리관청 | 대한민국 특허청 (RO/KR) |
| 0-7 | 출원인 또는 대리인의 서류참조기호 | PCT5040226 |
| I | 발명의 명칭 | 층상형 ALN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 ALN 나노시트 |
| II | 출원인 | |
| II-1 | 이 사람은 | 오직 출원인 (applicant only) |
| II-2 | 우측 지정국에 관한 출원인 | 모든 지정국 (all designated States) |
| II-4ko | 성명 | 연세대학교 산학협력단 |
| II-4en | Name: | INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, YONSEI UNIVERSITY |
| II-5ko | 주소 | 대한민국 03722 서울시 서대문구 연세로 50 |
| II-5en | Address: | 50, Yonsei-ro, Seodaemun-gu, Seoul 03722 Republic of Korea |
| II-6 | 국적 | 대한민국 KR |
| II-7 | 거주국 | 대한민국 KR |
| II-8 | 전화번호 | 82-2-522-2970 |
| II-9 | 팩스번호 | 82-2-522-2960 |
| II-11 | 출원인 코드 | 2-2005-009509-9 |

PCT 출원서

(전자적 형태가 원본)

| | | |
|---|--|--|
| III-1 III-1-1 III-1-3 III-1-4ko III-1-4en III-1-5ko | 출원인 및/또는 발명자 이 사람은 우측 지정국에 관한 발명자 성명 Name (LAST, First): 주소 | 오직 발명자 (inventor only) 모든 지정국 (all designated States) 심우영 SHIM, Woo Young 대한민국 06713 서울시 서초구 명달로4길 30, 501동 104호 (서초동, 서초5차대림이편한세상) |
| III-1-5en | Address: | (Seocho 5 cha Dearim e-Pyeonhansesang, Seocho-dong) #501-104, 30, Myeongdal-ro 4-gil, Seocho-gu, Seoul 06713 Republic of Korea |
| III-2 III-2-1 III-2-3 III-2-4ko III-2-4en III-2-5ko | 출원인 및/또는 발명자 이 사람은 우측 지정국에 관한 발명자 성명 Name (LAST, First): 주소 | 오직 발명자 (inventor only) 모든 지정국 (all designated States) 김혜수 KIM, Hye Soo 대한민국 06519 서울시 서초구 잠원로 136, 344동 405호 (잠원동, 신반포25차아파트) |
| III-2-5en | Address: | (Sinbanpo 25 cha Apt., Jamwon-dong) #344-405, 136, Jamwon-ro, Seocho-gu, Seoul 06519 Republic of Korea |
| III-3 III-3-1 III-3-3 III-3-4ko III-3-4en III-3-5ko | 출원인 및/또는 발명자 이 사람은 우측 지정국에 관한 발명자 성명 Name (LAST, First): 주소 | 오직 발명자 (inventor only) 모든 지정국 (all designated States) 원종범 WON, Jong Bum 대한민국 01687 서울시 노원구 노원로 569, 5동 1003호 (상계동, 임광아파트) |
| III-3-5en | Address: | (Limgwang Apt., Sanggye-dong) #5-1003, 569, Nowon- ro, Nowon-gu, Seoul 01687 Republic of Korea |

PCT 출원서

(전자적 형태가 원본)

| | | |
|-----------|---|---|
| IV-1 | <p>대리인 또는 대표자</p> <p>아래에 기재된 자는 관할 국제기관에 대하여 유측에 표시된 자격으로 출원인을 대리하는 것으로 선임되었다.</p> | <p>대리인</p> |
| IV-1-1ko | 성명 | <p>특허법인 이룸리온</p> |
| IV-1-1en | Name: | <p>ERUUM & LEEON INTELLECTUAL PROPERTY LAW FIRM</p> |
| IV-1-2ko | 주소 | <p>대한민국</p> <p>06575</p> <p>서울시 서초구 사평대로 108, 3층 (반포동)</p> |
| IV-1-2en | Address: | <p>(Banpo-dong) 3rd Floor, 108, Sapyeong-daero, Seocho-gu, Seoul 06575</p> <p>Republic of Korea</p> |
| IV-1-3 | 전화번호 | 82-2-554-6222 |
| IV-1-4 | 팩스번호 | 82-2-6969-5460 |
| IV-1-5 | 이메일 주소 | info@elip.kr |
| IV-1-5(a) | 이메일 사용동의 수리관청, 국제조사기관, 국제사무국, 국제예비심사기관이 필요 시 이 이메일 주소를 사용하여 이 국제출원과 관련하여 발행된 통지서를 송부할 것에 동의한다. | <p>오직 전자적 형태의 통지서만 송부 (서면 통지서는 미발송)</p> |
| IV-1-6 | 대리인 코드 | 9-2016-100061-5 |
| V | 지정국 | |
| V-1 | 본 출원서의 제출로, 규칙 4.9(a)에 따라, 부여될 수 있는 모든 종류의 권리 보호를 위하여, 그리고 해당하는 경우 지역특허 및 국내특허 모두를 위하여 당해 국제출원일에 PCT에 기속되는 모든 계약국이 지정된다. | |
| V-2 | V-2관은 출원서 제출시 또는 규칙 26의 2.1에 의해 그 이후 출원서 제6기제란에 위 특정 관련 계약국의 국내 선출원에 대한 우선권주장이 포함되어 있을 경우 당해 계약국의 국내법에 의해 해당 국내 선출원의 효력이 상실되는 것을 방지하기 위한 목적으로 당해 계약국의 지정을 제외하는 데에만 사용될 수 있다 (지정 제외시 이의 취소 불가능). | KR |
| VI-1 | 선국내출원에 대한 우선권 주장 | |
| VI-1-1 | 출원일 | 2018년 05월 18일 (18.05.2018) |
| VI-1-2 | 출원번호 | 10-2018-0057454 |
| VI-1-3 | 파리협약 당사국명 또는 WTO 회원국명 | KR |
| VI-2 | 우선권서류 신청 | |
| | 수리관청에 대하여 위에 명시된 선출원의 인증등본을 준비하여 국제사무국에 송부하여 줄 것을 신청한다. | VI-1 |
| VI-3 | 인용에 의한 보완 | |
| | 조약 제11조(1)(iii)(d) 또는 (e)에서 규정하는 국제출원의 요소, 또는 규칙 20.5(a)에서 규정하는 명세서, 청구 범위 또는 도면의 일부가 본 국제출원에는 포함되어 있지 않지만 조약 제11조(1)(iii) 규정의 요소 중 하나 이상이 수리관청에 최초로 접수된 날에 우선권주장의 기초가 된 선출원에 완전히 포함되어 있는 경우, 그 요소 또는 부분은 규칙 20.6 규정에 의한 확인을 조건으로, 규칙 20.6의 규정과 관련하여 본 국제출원에 있어서 인용에 의해 보완된다. | |

PCT 출원서

(전자적 형태가 원본)

| | | | |
|--------------|---|--------------------------|-----------|
| VII-1 | 국제조사기관(ISA) 선택 | 대한민국 특허청 (ISA/KR) | |
| VIII | 선언서 | 선언서 개수 | |
| VIII-1 | 발명자의 신원에 관한 선언 | - | |
| VIII-2 | 국제출원일에 특허출원 및 특허를 받을 수 있는 출원인의 자격에 관한 선언 | - | |
| VIII-3 | 국제출원일에 선출원의 우선권을 주장할 수 있는 출원인의 자격에 관한 선언 | - | |
| VIII-4 | 발명자 선언(미국에 대한 지정의 경우에 한함) | - | |
| VIII-5 | 신규성을 해치지 아니하는 개시 또는 신규성 상실의 예외에 관한 선언 | - | |
| IX | 체크 리스트 | 용지 수 | 전자적 파일 첨부 |
| IX-1 | 출원서(선언서 포함) | 4 | ✓ |
| IX-2 | 명세서 | 7 | ✓ |
| IX-3 | 청구범위 | 2 | ✓ |
| IX-4 | 요약서 | 1 | ✓ |
| IX-5 | 도면 | 4 | ✓ |
| IX-7 | 용지매수 소계 | 18 | |
| | 첨부 항목 | 서면 첨부 | 전자적 파일 첨부 |
| IX-8 | 수수료 계산 용지 | - | ✓ |
| IX-9 | 개별위임장 원본 | - | ✓ |
| IX-20 | 요약서에 수반되어야 할 도면 번호 | 1 | |
| IX-21 | 국제출원의 출원 언어 | 한국어 | |
| X-1 | 출원인, 대리인 또는 대표자의 서명 또는 날인 | | |
| X-1-1 | 성명 | | |
| X-1-3 | 권한 (출원서를 통해 서명자의 자격이 명백하지 않은 경우에는 그 자격도 표시) | | |

수리관청 전용

| | | |
|-------------|--|---------------|
| 10-1 | 국제출원으로 제출된 서류의 실제 접수일 | |
| 10-2 | 도면 | |
| 10-2-1 | 접수 | |
| 10-2-2 | 미접수 | |
| 10-3 | 국제출원으로 제출된 서류를 완성하는 서류 또는 도면의 추후 기간내 제출에 따른 정정된 실제 접수일 | |
| 10-4 | PCT 제11조(2)에 따라 제출이 요구된 보완서로서 기간내 제출된 보완서의 접수일 | |
| 10-5 | 국제조사기관(ISA) | ISA/KR |
| 10-6 | 조사료 납부시까지 지연된 조사용 사본의 송부 | |

국제 사무국 전용

| | | |
|-------------|------------------|--|
| 11-1 | 국제 사무국의 기록원본 접수일 | |
|-------------|------------------|--|

PCT(부속문서 - 수수료 계산용지)

(전자적 형태가 원본)

이 페이지는 국제 출원서의 일부가 아니며 페이지수에 포함되지 않는다

| | | | | |
|--------------|---|---|-------------|---------------|
| 0 | 수리관청 전용 | | | |
| 0-1 | 국제출원번호 | | | |
| 0-2 | 수리관청의 우편 소인 일자 | | | |
| 0-4 | Form PCT/RO/101 (부속문서) PCT 수수료 계산 용지 | | | |
| 0-4-1 | 우측에 기재된 바와 같이 작성되었다. | PCT-SAFE 버전 3.51.083.259 MT/FOP 20180701/0.20.5.24 | | |
| 0-9 | 출원인 또는 대리인의 서류참조기호 | PCT5040226 | | |
| 2 | 출원인 | 연세대학교 산학협력단 | | |
| 12 | 규정 수수료 계산 | 수수료 금액/개수 | 총 금액 (CHF) | 총 금액 (KRW) |
| 12-1 | 송달료 T | ⇔ | | 45000 |
| 12-2-1 | 조사료 S | ⇔ | | 450000 |
| 12-2-2 | 국제조사기관 | KR | | |
| 12-3 | 국제 출원 수수료 최초 30장 i1 | 1330 CHF | | |
| 12-4 | 최초 30장 초과 장수 | 0 | | |
| 12-5 | 최초 30장 초과 1장당 추가 수수료 (X) | 0 CHF | | |
| 12-6 | 총 추가금액 i2 | 0 CHF | | |
| 12-7 | i1 + i2 = i | 1330 CHF | | |
| 12-12 | XML 전자출원 감면 R | CHF-300 | | |
| 12-13 | 총 국제출원 수수료(i-R) I | ⇔ | 1030 | |
| 12-14 | 우선권 서류에 대한 수수료 우선권 서류를 요청한 개수 1 | | | |
| 12-15 | 문서별 수수료 (X) | 0 KRW | | |
| 12-16 | 총 우선권 서류 수수료 P | ⇔ | | |
| 12-17 | 우선권 주장 회복에 대한 수수료 RP 우선권 주장 회복에 대한 요청 개수 0 | | | |
| | 우선권 회복에 대한 수수료 총 금액 | | | |
| 12-19 | 총 금액 (T+S+I+P+RP) | ⇔ | 1030 | 495000 |
| 12-21 | 결제 방법 | 현금 | | |

PCT 위임장

(전자적 형태가 원본)

| | | |
|-------|--|--|
| 0-1 | PCT 위임장 (특허 협력 조약에 의거하여 제출된 국제 출원) (PCT 규칙 제90.4조) | |
| 0-1-1 | 우측에 기재된 바와 같이 작성되었다. | PCT-SAFE 버전 3.51.083.259 MT/FOP 20180701/0.20.5.24 |
| 1 | 아래에 서명한 출원인 | 연세대학교 산학협력단 |
| 1-1-1 | 우측에 기재된 사람을 아래의 자격으로 선임한다. | 특허법인 이룸리온 ERUUM & LEEON INTELLECTUAL PROPERTY LAW FIRM 대한민국 06575 서울시 서초구 사평대로 108, 3층 (반포동) (Banpo-dong) 3rd Floor, 108, Sapyeong-daero, Seocho-gu, Seoul 06575 Republic of Korea |
| 1-2 | 자격 | 대리인 |
| 1-3 | 우측 기관에 대하여 | 모든 관할 국제 기관 |
| 1-4 | 아래의 국제 출원에 관한 서명의 출원인을 대리함 | |
| 1-4-1 | 발명의 명칭 | 층상형 ALN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 ALN 나노시트 |
| 1-4-2 | 출원인 또는 대리인의 서류참조기호 | PCT5040226 |
| 1-4-3 | 국제출원번호(이용 가능한 경우) | |
| 1-4-4 | 수리관청 | 대한민국 특허청 (RO/KR) |
| 1-5 | 그리고 아래 서명인을 대신하여 지불하거나 지불받았다. | |
| 2-1 | 출원인 서명 |  |
| 2-1-1 | 성명 | 연세대학교 산학협력단 |
| 2-1-2 | 서명인의 성명 | 최문근 |
| 2-1-3 | 권한 (출원서를 통해 서명자의 자격이 명백하지 않은 경우에는 그 자격도 표시) | 대표 |

| | | |
|---|----|-----------------------------------|
| 3 | 일자 | 2019년 06월 10일 (10.06.2019) |
|---|----|-----------------------------------|

명세서

발명의 명칭: 층상형 ALN, 이의 제조 방법 및 이로부터 박리된 ALN 나노시트

기술분야

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

[2]

배경기술

- [3] 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.
- [4] 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, 전자이동도/전기전도도가 낮은 전이금속 칼코겐화합물 등 연구 대상이 매우 제한적인 문제점이 있다.
- [5] 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 개발에는 적합하지 않은 방법이다.
- [6] 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.

[7]

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [8] 본 발명은 종래의 벌크형 AIN과 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.

[9]

과제 해결 수단

- [10] 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 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 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.
- [11] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 염은 하기 화학식 1로 표시될 수 있다.
- [12] <화학식 1>
- [13] $\text{M}_a\text{X}_b(1 \leq a \leq 2, 1 \leq b \leq 3)$
- [14] 상기 화학식 1에서 M은 Al, Mg, 및 Mn 중에서 선택된 어느 하나, X는 Cl, F 및 I 중에서 선택된 어느 하나다.
- [15] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 용매는 탈이온수, 테트라하이드로퓨란 및 다이클로로메탄 중에서 선택된 적어도 어느 하나일 수 있다.
- [16] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 (1)단계의 열처리는 1000~1200°C에서 80~200시간 동안 수행될 수 있다.
- [17] 또한 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 (1)단계의 냉각은 0.5~3°C/시간 또는 10~15°C/시간의 감온 속도로 수행될 수 있다.
- [18] 또한 본 발명은 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖는 층상형 AlN을 제공한다.
- [19] 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, 1354 \pm 02, 1668 \pm 02, 2079 \pm 02, 2125 \pm 02, 2685 \pm 02, 2743 \pm 02, 3146 \pm 02 및 3233 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 3304 \pm 02, 3577 \pm 02, 377 \pm 02, 4948 \pm 02, 5902 \pm 02, 6554 \pm 02 및 7095 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다.
- [20] 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, 994 \pm 02, 1824 \pm 02, 1873 \pm 02, 1895 \pm 02, 1996 \pm 02, 2424 \pm 02, 2521 \pm 02 및 3011 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 3304 \pm 02, 3577 \pm 02, 377 \pm 02, 4948 \pm 02, 5902 \pm 02, 6554 \pm 02 및 7095 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다.

- [21] 또한 본 발명은 본 발명에 따른 층상형 AlN로부터 박리되고, 비정질 결정구조를 갖는 AlN 나노시트를 제공한다.
- [22] 본 발명의 일 실시예에 의하면, 상기 AlN 나노시트의 두께는 300 nm 이하일 수 있다.

[23]

발명의 효과

- [24] 본 발명에 따른 층상형 AlN은 종래의 벌크형 AlN과 달리 2차원 결정구조를 갖고, 박리성이 우수하여 나노시트의 형태로 박리하기 용이하며, 우수한 열전도 및 압전 특성을 갖기 때문에 고열전도세라믹스의 반도체 기판, 다이리스터의 기판이나 압전 소자에 널리 활용될 수 있다.

[25]

도면의 간단한 설명

- [26] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 층상형 AlN 제조 방법에 대한 모식도이다.
- [27] 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.
- [28] 도 3a는 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 SEM 이미지이다.
- [29] 도 3b는 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 SEM 이미지이다.
- [30] 도 3c는 실시예1의 층상형 AlN의 SEM 이미지이다.
- [31] 도 4는 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 의 사진이다.

[32]

발명의 실시를 위한 최선의 형태

- [33] 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.

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

- [35] 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.

[36]

- [37] 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.

- [38] 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.

- [39] 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, 일 예로 Ca_3N_2 일 수 있으나 이에 제한되지 않는다. 상기 Al 전구체는 Al 이온을 포함하는 화합물일 수 있으며, 일 예로 AlN 일 수 있으나 이에 제한되지 않는다.
- [40] 상기 혼합물은 반응용기에 봉입한 후 열처리될 수 있으며, 상기 반응용기 내부는 불활성 기체 분위기 또는 진공 분위기로 유지될 수 있다.
- [41]
- [42] 또한, 상기 반응용기의 소재는 일 예로 알루미늄, 폴리브덴, 텅스텐 또는 석영일 수 있으나, 시료와 반응하지 않고, 고온에서 파손되지 않는 물질이라면 소재에 제한 없이 사용할 수 있다.
- [43]
- [44] 도 1에 도시된 바와 같이 (1) 단계를 통해 준비되는 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 는 3D 결정 구조의 AlN 와 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 AlN 를 제조할 수 있다.
- [45] 상기 열처리는 $1000\sim 1200^\circ\text{C}$ 에서 80~200시간 동안 수행될 수 있다.
- [46] 만일, 상기 열처리가 1000°C 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°C 를 초과하여 수행될 경우, Ca 이온의 기화로 소결 반응시 사용되는 반응용기가 파손되거나, 제조되는 층상형 화합물의 수율이 저하되는 등의 문제가 있을 수 있다.
- [47] 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.
- [48] 상기 (1)단계에서 열처리한 후 냉각하는 과정은 층상형 화합물의 결정화를 위해 필요하며, 냉각 속도에 따라 결정의 단결정 크기가 변할 수 있다.
- [49] 상기 냉각은 $10\sim 15^\circ\text{C}/\text{시간}$ 또는 $0.5\sim 3^\circ\text{C}/\text{시간}$ 의 감온 속도로 수행될 수 있으며, 상기 감온 속도가 $10\sim 15^\circ\text{C}/\text{시간}$ 일 경우 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 를 다결정화할 수 있다. 상기 감온 속도가 $0.5\sim 3^\circ\text{C}/\text{시간}$ 일 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 AlN 의 단결정 크기는 유지될 수 있다. 상기 층상형 AlN 의 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.
- [50] 만일 상기 감온 속도가 $0.5^\circ\text{C}/\text{시간}$ 미만일 경우, Ca 이온의 기화로 인해

제조되는 물질의 조성 변화가 발생할 수 있고, 상기 감온 속도가 3°C/시간을 초과할 경우, 제조되는 층상형 화합물이 다결정화될 수 있다.

[51]

[52] 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.

[53] 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.

[54] 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.

[55] <화학식 1>

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

[57] 상기 화학식 1에서 M은 Al, Mg, 및 Mn 중에서 선택된 어느 하나, X는 Cl, F 및 I 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다.

[58] 또한 상기 용매는 탈이온수, 테트라하이드로퓨란 및 다이클로로메탄 중에서 선택된 적어도 어느 하나를 포함할 수 있다.

[59] 상기 염은 상기 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 의 Ca 이온 제거 효율을 증가시키고 Al이온의 제거를 방지하기 위하여 상기 용매에 용해될 수 있는 한 높은 농도로 상기 혼합용액에 포함될 수 있다.

[60] 상기 염은 상기 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 의 Ca 이온을 제거하기에 충분한 양으로 사용될 수 있으나, 바람직하게는 상기 혼합용액 내 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 및 염은 1:1 내지 1:3의 몰비율로 포함될 수 있다. 만일 상기 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 및 염의 몰비율이 1:1 미만일 경우, 상기 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 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.

[61] 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 °C 이상의 온도, 더욱 바람직하게는 20~60°C의 온도에서 수행될 수 있다. 만일 20°C 미만에서 수행될 경우, Ca 이온이 목적하는 수준으로 제거되지 않을 수 있고, 60°C를 초과하는 온도에서 수행될 경우 제조되는 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 의 층상형 구조가 붕괴될 수 있다. 또한, 20~60°C의 온도에서 수행될 경우 제조되는 층상형 $Ca_3Al_2N_4$ 의 층상형 구조를 유지하면서 알칼리 금속 이온 제거율이 우수할 수 있다.

[62] 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.

- [63] 또한, 상기 (2)단계를 수행한 후 층상형 AlN 외에 Ca 이온과 상기 염이 반응하여 생성된 반응물, 일례로 염화칼슘이 존재할 수 있으며, 이를 제거하기 위해 상기 (2)단계를 통해 수득된 분말을 용매로 세척할 수 있다.
- [64] 상기 반응물을 제거하기 위한 용매는 염화칼슘에 대한 용해도가 있는 용매라면 제한없이 사용될 수 있으며 일례로 물, 탈이온수 및 에탄올 중에서 선택된 적어도 어느 하나일 수 있다.
- [65]
- [66] 다음으로, 본 발명의 층상형 AlN에 대하여 설명한다.
- [67] 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.
- [68] Cu-K α 선을 사용하는 분말 X선 회절법에 의해 얻어지는 X선 회절도에 있어서, 상기 공간군이 C2/2인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 1354 \pm 02, 1668 \pm 02, 2079 \pm 02, 2125 \pm 02, 2685 \pm 02, 2743 \pm 02, 3146 \pm 02 및 3233 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 3304 \pm 02, 3577 \pm 02, 377 \pm 02, 4948 \pm 02, 5902 \pm 02, 6554 \pm 02 및 7095 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다. 또한, 상기 공간군이 P2/c인 단사정계 결정구조를 갖는 층상형 AlN는 994 \pm 02, 1824 \pm 02, 1873 \pm 02, 1895 \pm 02, 1996 \pm 02, 2424 \pm 02, 2521 \pm 02 및 3011 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 3304 \pm 02, 3577 \pm 02, 377 \pm 02, 4948 \pm 02, 5902 \pm 02, 6554 \pm 02 및 7095 \pm 02의 2 θ 값에서 피크를 갖지 않을 수 있다.
- [69]
- [70] 다음으로, 본 발명의 AlN 나노시트에 대하여 설명한다.
- [71] 본 발명에 따른 AlN 나노시트는 본 발명에 따른 층상형 AlN로부터 박리되어 수득할 수 있으며, 비정질 결정구조를 갖는다.
- [72] 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.
- [73] 상기 층상형 AlN의 박리 방법은 당업계에서 공지된 층상형 물질의 박리 방법을 사용할 수 있으며, 일례로 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.
- [74]
- [75] 한편, 상술한 본 발명에 따른 층상형 AlN 및 AlN 나노시트는 우수한 열전도 및 압전 특성을 갖기 때문에 고열전도세라믹스의 반도체 기판, 다이리스터의 기판이나 압전 소자에 활용될 수 있다.

- [76] 본 발명에 따른 층상형 AIN 및 AIN 나노시트가 압전 소자에 활용될 경우, 압전 소자에 포함되는 압전체로서 본 발명에 따른 층상형 AIN 또는 AIN 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.
- [77] 또한, 본 발명에 따른 층상형 AIN 및 AIN 나노시트는 열전도 특성이 우수하기 때문에 고열전도세라믹스의 반도체 기판 또는 다이리스터의 기판에 활용될 경우, 열전도 특성이 우수할 수 있다. 상기 기판 이외의 구성은 당업계에서 공지된 구성을 채용할 수 있어서 본 발명은 이에 대한 구체적인 설명은 생략한다.
- [78] 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.

[79]

발명의 실시를 위한 형태

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

[81] 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°C 에서 100시간 동안 열처리하였다. 이후 재 결정화를 위해 $2^\circ\text{C}/\text{시간}$ 의 감온 속도로 냉각하여 고 순도의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 단결정을 수득하였다.

[82]

[83] (실시예1) - 층상형 AIN 제조

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

[85]

[86] (실시예3) - AIN 나노시트 제조

[87] 실시예1에서 제조된 층상형 AIN를 테이프로 박리하여 AIN 나노시트를 제조하였다.

[88]

[89] (비교예1) 3D 벌크형 AIN

[90] 상용 제품인 3D 벌크형 AIN(시그마알드리치)를 준비하였다.

[91]

[92] (실험예1) XRD 분석

[93] 비교예1의 3D AIN, 준비예1의 층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 및 실시예1의 층상형 AIN에

대하여 XRD 분석을 실시하였으며, 그 결과를 도 2에 도시하였다.

- [94] 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.
- [95] 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.
- [96]
- [97] (실험예2) SEM 분석
- [98] 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.
- [99] 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.

청구범위

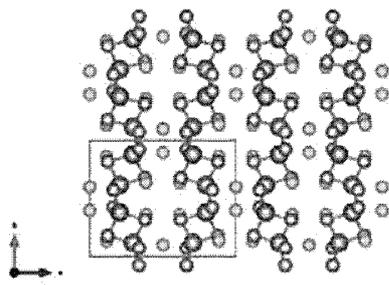
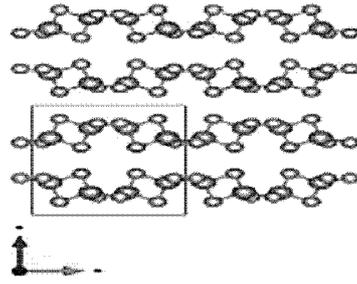
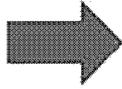
- [청구항 1] (1) Ca 전구체 또는 Ca 분말, Al 전구체 또는 Al 분말, 및 N 전구체를 포함하는 혼합물을 열처리한 후 냉각하여 공간군(space group)이 C2/2 또는 P2/c인 단사정계(monoclinic) 결정구조를 갖는 화학식 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ 로 표시되는 층상형 화합물을 수득하는 단계; 및
(2) 상기 층상형 화합물의 결정구조 변화 없이 상기 층상형 화합물에 포함된 Ca 이온을 선택적으로 제거할 수 있는 염 및 상기 염을 용해시킬 수 있는 용매를 포함하는 혼합용액으로 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>
 $\text{M}_a\text{X}_b(1 \leq a \leq 2, 1 \leq b \leq 3)$
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°C에서 80~200시간 동안 수행되는 층상형 AlN의 제조 방법.
- [청구항 5] 제1항에 있어서,
상기 (1)단계의 냉각은 0.5~3°C/시간 또는 10~15°C/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, 1354±02, 1668±02, 2079±02, 2125±02, 2685±02, 2743±02, 3146±02 및 3233±02의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 3304±02, 3577±02, 377±02, 4948±02, 5902±02, 6554±02 및 7095±02의 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, 994±02, 1824±02, 1873±02, 1895±02, 1996±02, 2424±02, 2521±02 및 3011±02 의 2 θ 값에서 피크를 갖고, 3304±02, 3577±02, 377±02, 4948±02,

- [청구항 9] 5902±02, 6554±02 및 7095±02의 2θ값에서 피크를 갖지 않는 층상형 AlN. 제6항에 따른 층상형 AlN로부터 박리되고, 비정질 결정구조를 갖는 AlN 나노시트.
- [청구항 10] 제9항에 있어서,
상기 AlN 나노시트의 두께는 300 nm 이하인 AlN 나노시트.

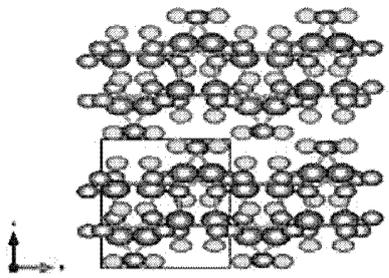
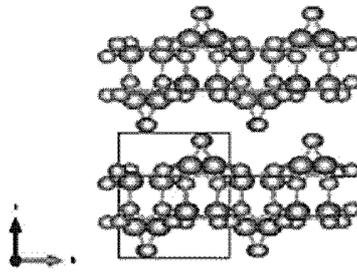
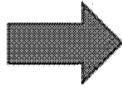
요약서

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

[도1]

층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ C2/2
(Monoclinic)

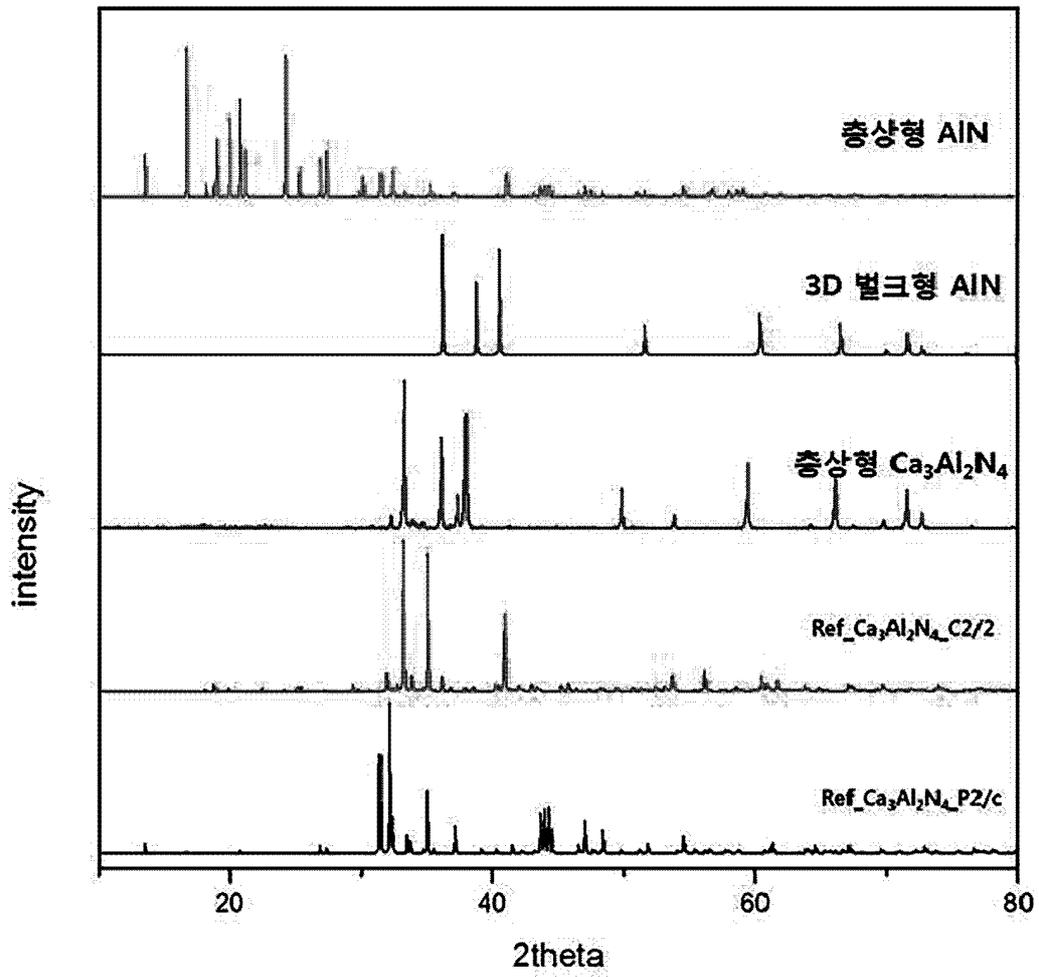
층상형 AlN

C2/2
(Monoclinic)층상형 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{N}_4$ P21/c
(Monoclinic)

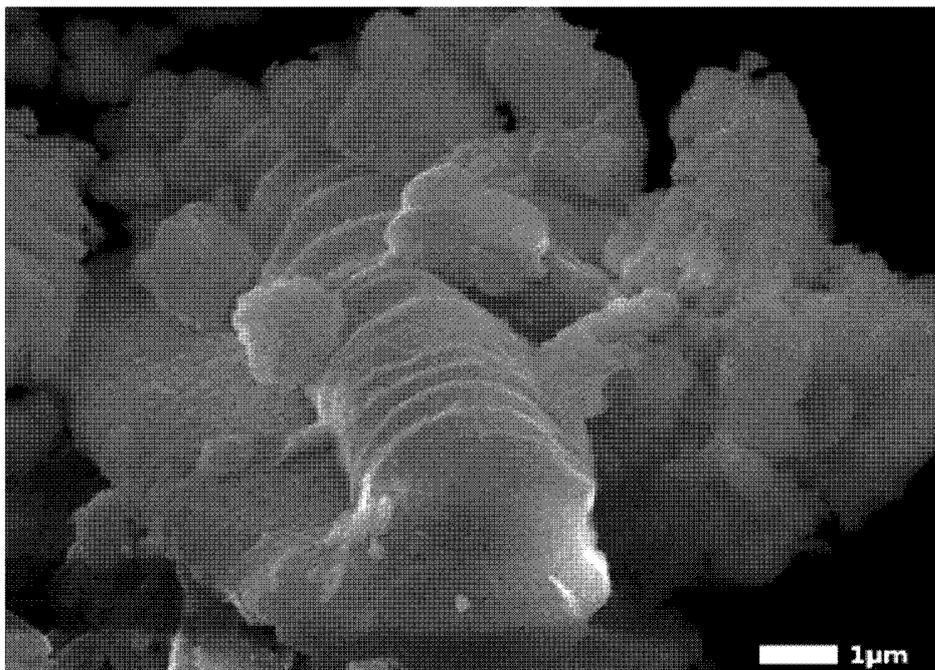
층상형 AlN

P21/c
(Monoclinic)

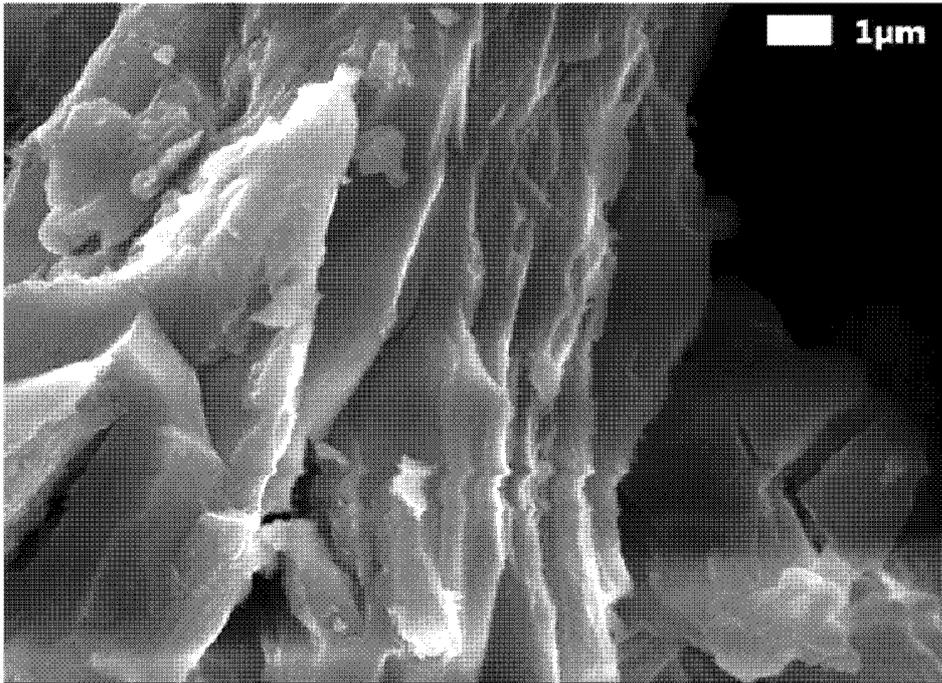
[도2]



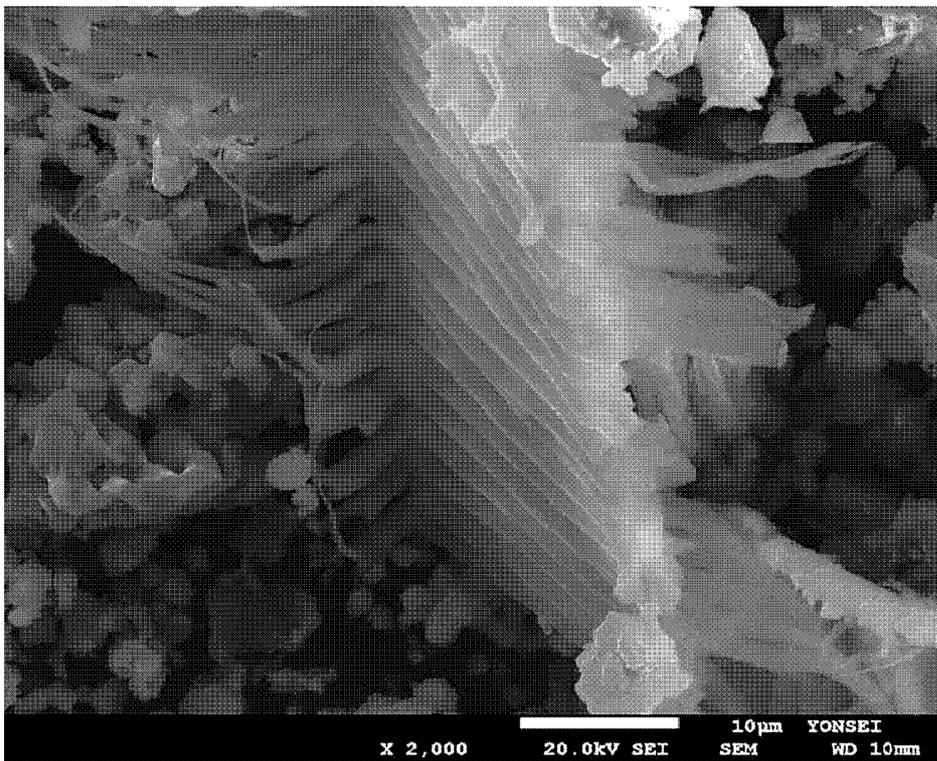
[도3a]



[도3b]



[도3c]



[도4]

