

## 분무열분해법에 의한 MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>계 화합물의 분체합성 및 그 특성

박정현 · 박찬욱 · 조경식  
연세대학교 공과대학 요업공학과  
(1988년 6월 23일 접수)

---

### A Study on the Preparation of MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> System Ceramic Powders by Spray Pyrolysis Method

Jeong-Hyun Park, Chan-Ook Park and Kyeong-Sik Cho  
Dept. of Ceramic Eng., Yonsei University  
(Received June 23, 1988)

#### 요 약

분무열분해법에 의하여 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6 H<sub>2</sub>O, Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9 H<sub>2</sub>O 및 SiCl<sub>4</sub> 용액을 사용하여 spinel, mullite 및 cordierite 분체를 제조하였다. 분무기는 이중관식 노즐을 사용하였다. 합성온도 800°C 이상에서 단일상의 spinel 과 mullite 분체가 얻어졌으나, cordierite 조성은 모든 합성온도에서 비결정질이었다. 이 cordierite 조성분체는 다시 1000°C에서 2시간 하소시킴으로써  $\mu$ -와  $\alpha$ -상의 cordierite 가 공존하였으며, 1300°C에서 2시간 하소시킴으로써  $\alpha$ -cordierite 단일상으로 결정화하였다. 분체들은 모두 중공상의 구형입자였으며, 모든 분체에서 입도분포는 0.1~3  $\mu$ m 정도로서, 평균입자 크기는 약 1.4  $\mu$ m 정도였다.

비표면적값은 1000°C 에서 합성한 분체가 최대의 값을 보였으며, spinel, mullite 및 cordierite 의 경우 각각 45.9, 25.8 및 13.6 m<sup>2</sup>/gr 의 값을 나타내었다.

#### ABSTRACT

Spinel, mullite and cordierite powders have synthesized from Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6 H<sub>2</sub>O, Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9 H<sub>2</sub>O and SiCl<sub>4</sub> solution by spray pyrolysis method. The two-fluid nozzle was used as an atomizer.

The powders of spinel and mullite were synthesized above 800°C, but the cordierite composition was noncrystalline for all synthesizing temperature. Those noncrystalline powders were crystallized to  $\alpha$ -cordierite during calcining at 1300°C for 2 hrs.

The synthesized spinel, mullite and cordierite powders seem to be consisted of agglomerated hollow spherical particles. For all powders, the particle size ranged from submicron to about 3  $\mu$ m and mean particle size was

about 1.4 μm in diameter

The specific surface area values of spinel, mullite and cordierite powders were maximum for powders prepared at 1000°C, and those were 45.9, 25.8 and 13.6 m<sup>2</sup>/gr, respectively

### 1. 서 론

미세하고 순수한 분말의 제조는 재현성 있는 고강도 세라믹스를 만드는데 필수적인 요소로서 인식되어져왔다. 보통 세라믹스 제조에 있어서 원료분말의 특성은 최종제품의 특성을 좌우하게 되며, 원료분말중에 불순물의 존재는 최종물성에 큰 영향을 미친다. 특히 파인세라믹스에 있어서 원료분말의 특성은 최종 물성과 제조공정에 미치는 영향이 매우 커서 원료의 입도 및 그 분포, 입자의 형태가 큰 영향을 미치게 된다. 이런 이유로 해서 천연광물 그대로는 이들 특성을 만족할 수 없으므로 고순도로 정제하거나 합성원료를 사용하게 된다.

이런 원료분말 제조방법으로서 최근 액상법이 큰 각광을 받고 있으며 이중에서도 졸겔법,<sup>1,2)</sup> 동결건조법,<sup>3,4)</sup> 공침법<sup>5,6)</sup> 및 분무열분해법<sup>7-10)</sup>에 의한 고순도 미분말 제조에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 그러나 졸겔법은 규모를 확대하는데 어려움이 많고, 동결건조법은 원자단위의 혼합과 조성을 임직하게 규제할 수 있으나 수율이 나빠 다량을 얻기 어려우며, 공침법은 처리능력은 크지만 조작이 복잡하여 균일한 조성을 얻기 어려운 문제점이 있다. 이에 반하여 분무열분해법은 금속염용액을 고온분위기중에서 분무시켜 순간적으로 열분해시키는 방법으로서 조작이 비교적 용이할 뿐만 아니라, 용액을 이용하기 때문에 특히 다성분계에서 균일한 조성의 원료를 얻는데 효과적인 방법으로 알려져 있다. 또한 다른 액상법에서는 선택적인 편석결정화 현상이 흔히 발생하지만, 본 방법에서는 이러한 현상이 미세한 액적내로 한정될 뿐만 아니라, 순간적으로 반응되기 때문에 위와 같은 결점을 최소화 할 수 있다. 그리고 용액을 이용하므로 화학적으로 균일한 조성의 원료를 얻는데 효과적인 방법으로서, 출발용액의 조성 과 동일한 양이온 성분비를 갖는 원료분말을 합성할 수 있으며, 출발용액에 용해된 불순물 이외의 것이 합성공정중에 혼입될 가능성이 적어 합성분말의 고순도화를 기할 수 있다

이에 본 연구에서는 MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>계 화합물인 spinel, mullite 및 cordierite 의 분체제조에 있어서, 선택된 각 양이온 공급원의 열분해 조건을 설정하여 제조된 각

분체의 성장 및 그 특성에 관하여 연구하였다.

### 2. 실험방법

#### 2. 1 출발용액

##### 2. 1. 1 출발물질

분체합성에 필요한 출발용액의 양이온공급원으로는 순도 2N의 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6 H<sub>2</sub>O, Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9 H<sub>2</sub>O 및 SiCl<sub>4</sub>를, 용매로는 순도 3N의 ethanol을 사용하였다. Table 1에 출발물질로 사용한 시약의 내역을 나타내었다.

##### 2. 1. 2 출발용액의 제조

화학양론적 조성의 spinel, mullite 및 cordierite 가 되도록 각각 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6 H<sub>2</sub>O, Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9 H<sub>2</sub>O 및 SiCl<sub>4</sub>를 칭량하였으며, 용액농도는 0.1~0.3 mol/l가 되도록 ethanol에 용해시켰다. 이때 화학적으로 균일하게 혼합하기 위하여 자석 교반기로 10 시간 동안 교반시켰다.

##### 2. 1. 3 출발용액의 물리적 성질

출발용액의 물리적 성질을 알아보기 위하여 표면장력, 비중 및 점도를 측정하였다. 표면장력의 측정은 반경 0.575 mm의 모세관을 이용하여 오름높이를 측정하여 다음 식<sup>17)</sup>에 대입하여 구하였다.

$$\gamma = \frac{r_{\text{tube}} \cdot h \cdot \Delta\rho \cdot g}{2}$$

Table 1. Starting Materials.

Material	Purity	Supplier	Grade
Mg(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	>99%	Hayashi Pure Chemical Ind. Ltd., Jpn.	S. G.
Al(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 9H <sub>2</sub> O	>99%	Wako Pure Chemical Ind. Ltd., Jpn.	S. G.
SiCl <sub>4</sub>	>99%	Fluka Chemie AG, Swiss	E. P.
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	>99.9%	Duksan Pharmaceutical Co., Ltd.	S. G.

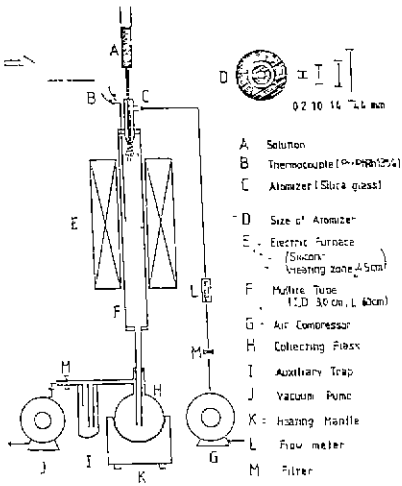


Fig. 1. Apparatus for spray pyrolysis.

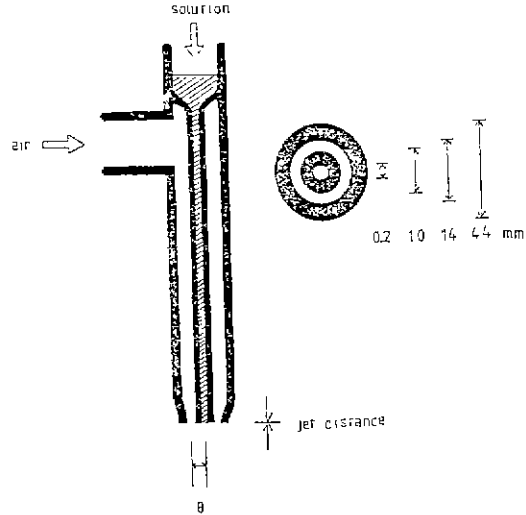


Fig. 2. Scheme of two-fluid atomizer.

여기서,  $\gamma$ : 용액의 표면장력 (dyne/cm)

$r_{\text{tube}}$ : 모세관의 반경 (cm)

$h$ : 용액의 모세관 오름높이 (cm)

$\Delta\rho$ : 용액과 공기의 밀도차 ( $\text{gr}/\text{cm}^3$ )

$g$ : 중력가속도 ( $\text{cm}/\text{s}^2$ )

비중측정은 picnometer를 사용하여 각 출발용액의 비중을 측정하고 순수한 물의 비중을 측정한 후 측정당시의 온도에서 물의 밀도에 대한 상대값으로 산출하였다. 점도 측정은 B형 점도측정기(일본, 東京計器, BL형)를 사용하여 6, 12, 30과 60 rpm에서 각각 측정하여 평균값을 취하였다.

## 2. 2 분체제조

본 실험에서 사용한 분무열분해장치는 Fig. 1과 같다. 용액은 이중관 분무노즐을 통해 분무시키는데, 외부공기 노즐에 공급되는 압축공기의 힘에 의해 내부용액노즐로 용액이 분무되게 된다. 또한 본 실험에 사용한 이중관 분무노즐의 모식도를 Fig. 2에 보였다. 본 노즐은 용액과 공기가 외부에서 혼합되는 외부혼합형으로서, 용액과 공기의 진행방향이 평행한 민행형이며 jet distance는 0이다. 노즐단면의 치수를 보면 용액구멍의 직경이 0.2 mm이고, 공기구멍의 내경 및 외경은 각각 1.0 및 1.4 mm이다.

분무된 액적은 mullite 반응관의 고온부를 통과하여 열분해의 합성반응이 순간적으로 일어난다. 분무조건은 압축공기의 압력을 1atm으로 하고, 공기유량을 10 l/min으로 하였다 또 합성온도는 700~1100°C로 하였는데, 이

는  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 의  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 의 완전한 열분해 온도가 500°C로 보고되었으나,<sup>12)</sup> 로네에서 분무액적의 매우 짧은 체류시간 때문에, 완전한 분해의 효과적인 온도는 분해 kinetics를 만족하기 위하여 이 온도보다 높아야만 하기 때문이다.

합성된 분체는 압축공기의 분사력 및 진공펌프의 흡인력을 이용하여 건식으로 포집하였으며, 포집수율은 약 40% 정도였다. 포집한 분체는 110°C로 유지시킨 건조기 내에서 충분히 건조시킨 후 모든 측정에 사용하였다.

## 2. 3 분석 및 관찰

### 2. 3. 1 액적 크기 관찰

최중분체의 크기에 영향을 주는 액체의 크기를 관찰하기 위하여 분무열분해 장치에 사용된 2중관 노즐로서 공기중에 분무시키, 액적을 실리콘웨이퍼의 거울면에 흡착시킨 다음 광학현미경으로 관찰하였다. 또한, 이 관찰치와 Tanasawa 등<sup>18)</sup>이 제안한 다음식에 의한 계산치를 비교하였다.

$$D_p = \frac{585}{V_{\text{rel}}} \left( \frac{\sigma}{\rho_l} \right)^{0.5} + 597 \left( \frac{\mu}{(\rho_l \sigma)^{0.5}} \right)^{0.45} \cdot \left( 1000 \frac{Q_l}{Q_a} \right)^{1.5}$$

여기서,  $D_p$ : 분무된 액적의 평균크기 ( $\mu\text{m}$ )

$\rho_l$ : 용액의 비중 ( $\text{gr}/\text{cc}$ )

$\sigma$ : 용액의 표면장력 (dyne/cm)

$\mu$ : 용액의 점도 (P)

$V_{\text{rel}}$ : 노즐에서 용액과 공기의 상대속도 (m/s)

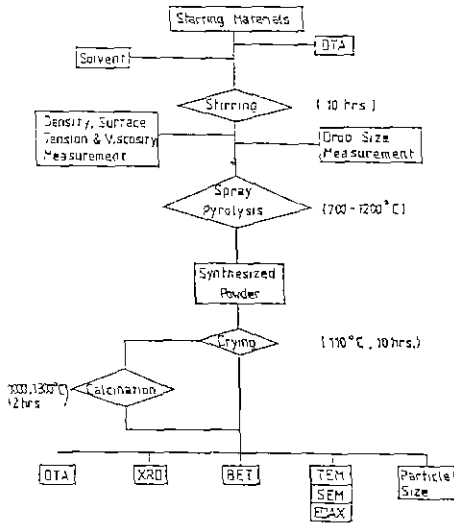


Fig.3. Flow chart of experiment.

$Q_1$  : 용액의 유량(m<sup>3</sup>/min)

$Q_a$  : 공기의 유량(m<sup>3</sup>/min)

### 2.3.2 열분석

합성된 각 분체에 존재하는 미량의 미반응물이나 비정 질상의 결정화온도를 결정하기 위하여 열분석을 행하였다. 열분석기는 일본 Rigaku 사제 Thermoflex model 을 사용하여, 10°C/min 의 승온속도로 1300°C 까지 행하였으며 표준물질로  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 사용하였다.

### 2.3.3 X-선 회절분석

합성된 각 분체의 결정상 및 미반응물을 확인하기 위하여 X-선 회절분석을 행하였다. X-선 회절분석기는 일본 Rigaku 사제를 사용하였으며 분석조건을 다음과 같다.

CuK<sub>α</sub> radiation, Ni-filtered ; 30 kv, 10 mA ; full scale : 2000 cps, time constant 0.5 sec, scanning speed 8°/min

### 2.3.4 TEM과 SEM 관찰 및 EDAX 분석

각 온도 및 조성에서 합성된 분체의 입자크기 및 형태 등의 미세구조를 관찰하기 위하여 TEM 및 SEM 관찰을 하였으며, 또한, 합성된 분체의 질점성을 비교하기 위하여 전지선 회절페턴을 관찰하였다. 이때, 사용한 전자현미경은 일본 Hitachi 사제 H-600 model 이었다. 그리고 합성된 분체의 양이온 성분비를 알아보기 위하여 EDAX 분석을 하였는데, 사용한 전자현미경은 일본 Jeol 사제 JSM-35 CF model 이었다.

### 2.3.5 비표면적 및 입도분포측정

비표면적 측정은 미국 Micromeritics 사제 Rapid Surface Area Analyzer(BET method), model 220 을 사용하여 행하였으며, 입도분포측정은 동사제 Sedigraph 5000 ET model 의 Particle Size Analyzer 를 사용하였다.

본 실험의 총괄적인 공정도를 Fig. 3 에 나타내었다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 출발용액의 물리적 성질 및 분무액적 크기

화학양론 spinel, mullite 및 cordierite 조성이 되도록 용해시킨 각 농도의 출발용액에 대한 물리적 성질의 측정 결과는 Table 2 과 같다. 그리고 본 실험에서의 분무조건 (압축공기압력 . latm, 공기유량 10 l /min)에서 구한 공기의 용액의 유량 및 상대속도는 Table 3 와 같으며, 또한 이들 값으로서 Tanasawa 등이<sup>18)</sup> 제안한 실험식에 대입하여 얻은 값을 같이 나타내었다. 계산된 평균액적크기는 spinel, mullite 및 cordierite 의 경우 각각 14.09, 14.20 및 13.88  $\mu$ m 이었다. 그리고 이들 액적크기분포를 관찰하기 위하여 실리콘웨이퍼에 분무시킨 광학현미경으로 관찰한 사진은 Fig. 4 와 같으며, 이것의 빈도 백분율을 Fig. 5 에 막대그래프로 나타내었다. 분무액적을 흡착시켜 관찰하는 경우 액적이 퍼져서 액적크기가 약간 커질

Table 2. Physical Properties of Each Solution.

Solution	Concentration (mol/l)	Density (gr/cc)	Surface Tension (dyne/cm)	Viscosity (cP)
Spinel	0.3	0.907	24.851	5.965
Mullite	0.1	0.931	26.249	5.288
Cordierite	0.1	0.948	25.354	5.843

Table 3 Spraying Conditions and Calculated Mean Droplet Sizes

Solution	Volumetric Flow Rate (m <sup>3</sup> /s)		Relative Velocity of Air to Solution (m/s)	Calculated Mean Droplet Size ( $\mu$ m)
	Air	Solution		
Spinel	$1.67 \times 10^{-4}$	$3.27 \times 10^{-9}$	220.94	14.09
Mullite	$1.67 \times 10^{-4}$	$2.53 \times 10^{-9}$	220.96	14.20
Cordierite	$1.67 \times 10^{-4}$	$2.87 \times 10^{-9}$	220.95	13.88

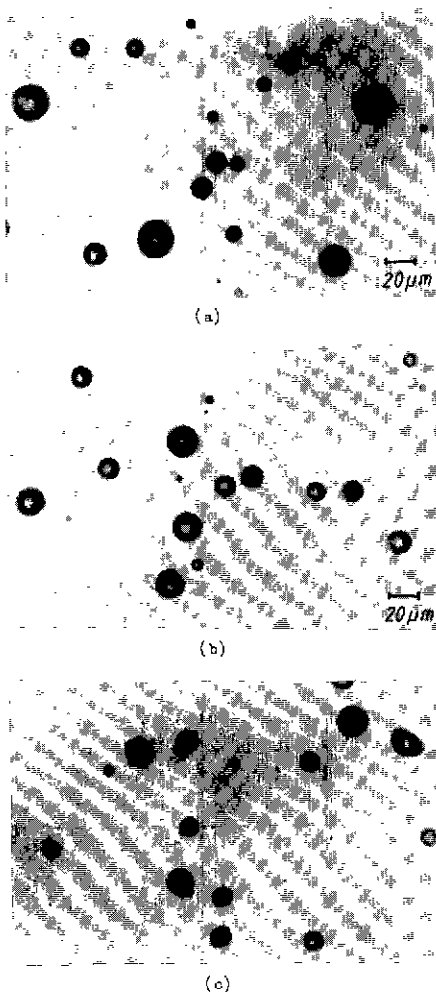


Fig. 4. Photographs of sprayed droplets. (a) spinel(0.3 mol/l), (b) mullite(0.1 mol/l) and (c) cordierite(0.1 mol/l).

수 있으나, 분포정도를 계략적으로 알아보기 위하여 계산치와 병행하여 실험하였다 그 결과 spinel, mullite 및 cordierite 출발용액의 액적크기분포는 모두 5~15 μm의 크기가 약 50% 이상을 차지하는 것으로 나타났다

### 3. 2 합성분체의 X-선 회절분석

Fig. 6에 700~1100°C 에서 합성한 spinel 분체의 X-선 회절분석 결과를 나타내었다. 700°C 에서 열분해시킨 결과 미반응물의 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6 H<sub>2</sub>O 피크가 관찰되었으며, 800°C 에서 행한 결과 미반응물에 기인하는 피크는 관찰되

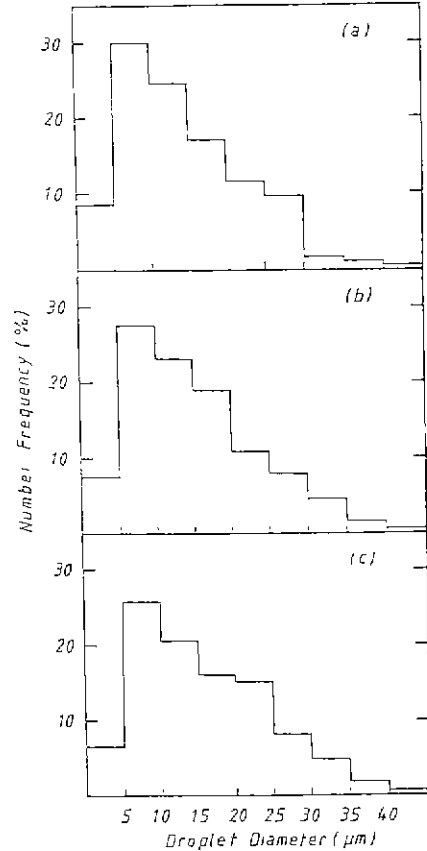


Fig. 5. Droplet size distributions of (a) spinel, (b) mullite and (c) cordierite solution

지 않고 spinel의 단일피크를 보였다. 여기서 미반응물의 Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9 H<sub>2</sub>O가 관찰되지 않고 Mg(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 6 H<sub>2</sub>O만 관찰되는 것은 전자의 경우 분무열분해등인 중간화합물을 형성하지 않기 때문에 후자보다 더 낮은 온도에서 열분해되기 때문인 것으로 여겨진다 이후 900~1100°C 까지 행한 결과 피크의 강도가 일분해 온도의 증가에 따라 높아졌다. 이것으로 부터 spinel의 단일상이 800°C 부터 나타나긴 하나 결정성이 약간 좋지 못하며, 온도가 높아짐에 따라 결정성이 좋은 Spinel 분체로 됨을 알 수 있다. Fig. 7에는 800~1100°C에서 합성한 mullite 분체의 X-선 회절분석 결과를 나타내었다. 800°C에서 열분해시킨 결과 mullite 단일상의 피크가 나타났으며, 온도의 증가에 따라 피크의 강도도 증가함을 일 수 있다. 이것도 spinel 분체의 경우와 같이 생각할 수 있다.

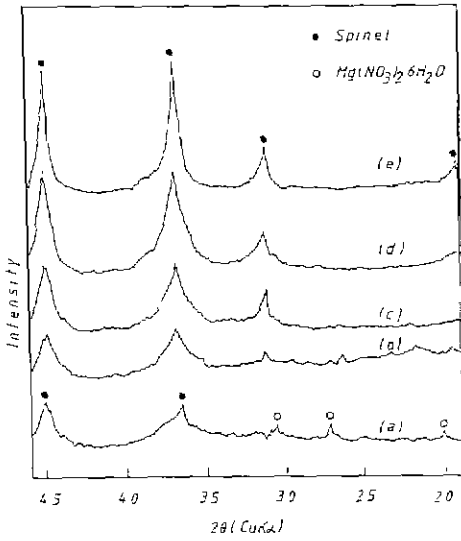


Fig. 6. X-ray diffraction patterns of spinel powders prepared at (a) 700, (b) 800, (c) 900, (d) 1000 and (e) 1100 °C.

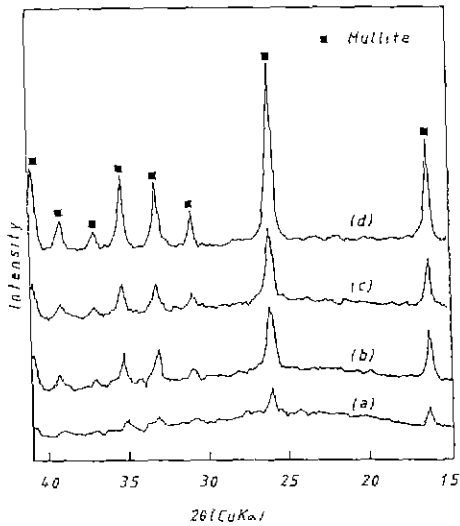


Fig. 7. X-ray diffraction patterns of mullite powders prepared at (a) 800, (b) 900, (c) 1000 and (d) 1100 °C.

Fig. 8 에는 800°C 에서 열분해시킨 cordierite 소성 분체와 이것을 다시 1000°C 및 1300°C 에서 2시간 하소한 분체의 X-선 회절분석 결과를 나타내었다. Cordierite 분체



Fig. 8 X-ray diffraction patterns of cordierite powder prepared at 800°C : (a) as-prepared, (b) calcined at 1000°C for 2 hrs. and (c) calcined at 1300°C for 2 hrs.

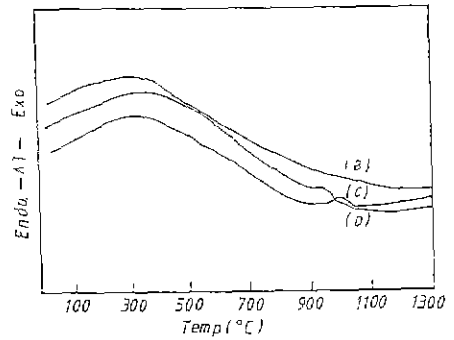


Fig. 9. DTA curves of (a) spinel, (b) mullite and (c) cordierite powders prepared at 800°C

의 경우는 spinel 과 mullite 분체의 경우와는 달리 바로 합성한 분체는 결정성이 좋지 못하여 X-선 회절분석결과 cordierite 에 해당되는 피크가 나타나지 않았다. 그래서 이것을 다시 1000°C 에서 2시간 하소시킨 결과 μ-와 α-상의 cordierite 가 공존하는 패턴을 보였으며, 1300°C 에서 2시간 하소시킨 결과 α-cordierite 단일상을 나타내었다.

### 3. 3 합성분체의 열분석

800°C 에서 합성한 각 분체의 열분석 결과를 Fig. 9 에 나타내었다. Spinel 의 경우는 본 열분석 실험조건하에서 별다른 피크를 나타내지 않으며, mullite 의 경우는 이것의 결정화에 의한 발열피크가 950°C 에서 미량 나타났으며, cordierite 경우는 mullite 보다 더 큰 발열피크가 980°C 에서 나타났다. 이는 앞의 X-선 회절분석 결과와 마찬가지로 cordierite 의 경우 분무열분해한 분체는 결정성이 좋지 못하다는 것을 나타내고 있으며, 1000°C 이상의 하소에 의해 결정성 cordierite 로 전이될 수 있음을 알 수 있다.

### 3. 4 합성분체의 전자현미경 관찰 및 EDAX 분석

800°C 에서 합성한 spinel, mullite 및 cordierite 분체에 대한 TEM 관찰 및 전자선 회절패턴의 결과를 Fig. 10 에 보였다. 그림에서 알 수 있듯이 각 분체들은 중공상인 구형의 입자형태를 보이며, 몇개의 입자들이 서로 뭉쳐있음을 알 수 있다. 전자선 회절은 각 분체들중 한개의 입지를 선택하여 행하였는데, spinel 이나 mullite 는 결정성을 나타내나, cordierite 의 경우는 비결정질임을 알 수 있다. 이는 앞의 3.2 와 3.3 절의 결과와 일치한다. Fig. 11, Fig. 12 및 Fig. 13 에는 각각 800~1100°C 에서 합성한 spinel, mullite 및 cordierite 의 SEM 사진을 나타내었

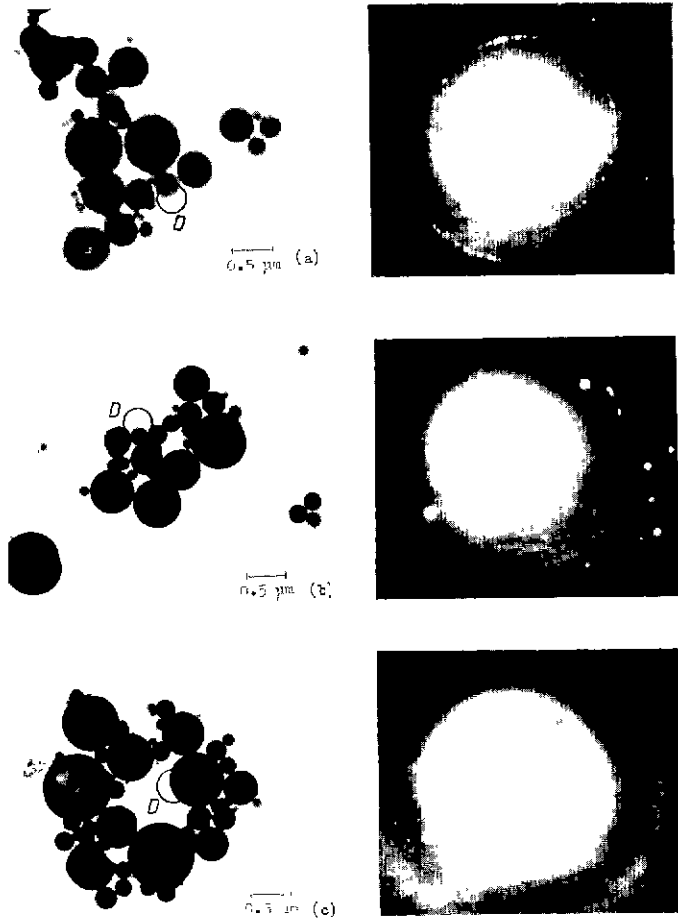


Fig.10. TEM and electron diffraction pattern photographs of (a) spinel, (b) mullite and (c) cordierite powders prepared at 800°C.

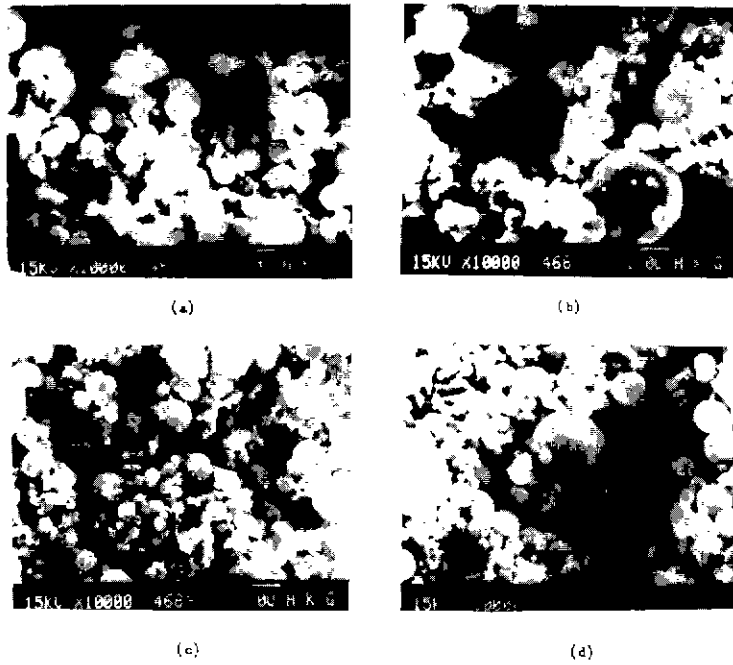


Fig.11. SEM photographs of spinel powders prepared at (a) 800, (b) 900, (c) 1000 and (d) 1100°C.

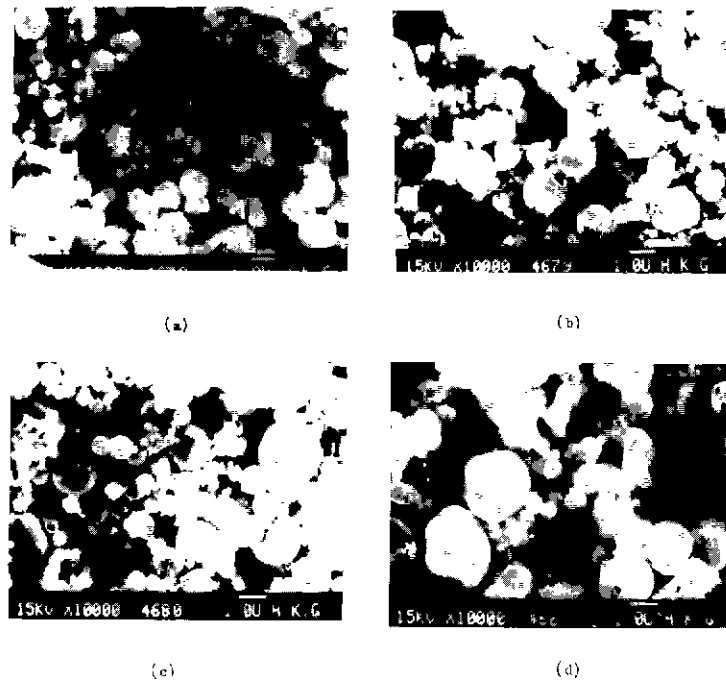


Fig.12. SEM photographs of mullite powders prepared at (a) 800, (b) 900, (c) 1000 and (d) 1100°C.



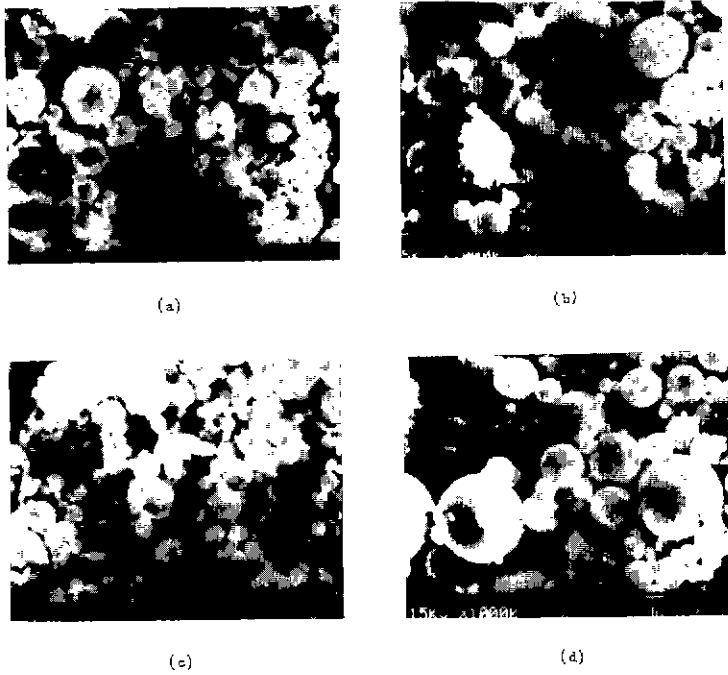


Fig. 13. SEM photographs of cordierite powders prepared at (a) 800, (b) 900, (c) 1000 and (d) 1100°C.

다. 모든 분체의 경우 합성온도 800°C 와 900°C 에서는 약 0.1~3.0 μm 정도 크기의 구형입자들로 구성되어 있으며 합성온도가 증가할수록 표면이 매끄러운 입자의 비율이 증가한다. 이 이유는 합성온도 800°C 와 900°C 에서의 경우, 표면이 거친 입자는 액적의 열분해 과정에서 표면이 완전히 고화되기 전에 수증기 및 분체가스가 열분해로 인해 액적의 내부에서 계속 발생하기 때문으로 생각되며, 또한 결정화 반응도 완전히 진행되지 못한 것으로 생각된다. 1000°C 의 경우에는 앞서의 입자들에 비해 입자성장은 보이지 않으며, 오히려 더 균일한 입자형태를 보인다. 1100°C 의 경우에서도 입자들은 앞의 경우와 비슷한 크기 분포를 보이며, cordierite 의 경우에는 약 3.5 μm 크기 인 입자들이 많이 관찰되었다. 1000°C 의 경우에는 액적 표면에서 석출된 염의 용융으로 인하여 매끄러운 표면이 형성되고, 1100°C 의 경우는 표면에서 용융염의 고화속도가 빨라 내부에서 빠져나오는 증가에 의해 파괴되는 입자가 형성될수도 있다.<sup>8)</sup> Fig. 14 에 800~1100°C 에서 합성한 mullite 분체의 EDAX 분석결과를 나타내었다. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 성분의 질량백분율은 합성온도 800, 900, 1000 및 1100°C

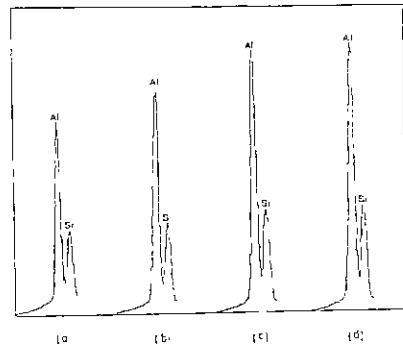


Fig. 14. EDAX analysis of mullite powders prepared at (a) 800, (b) 900, (c) 1000 and (d) 1100°C.

의 경우 각각 70.18, 70.52, 70.44 및 70.37 wt%로서 화학양론조성 (3 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> · 2 SiO<sub>2</sub>) 경우의 값인 71.80 wt% 보다 약간 작은 값을 보였는데, 이것은 출발물질로 사용한 Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> · 9 H<sub>2</sub>O 가 공기중에서 쉽게 수분을 흡수하므로서 무게량량시 발생하는 오차로도 생각할 수 있다

### 3. 5 합성분체의 비표면적 및 입도분포

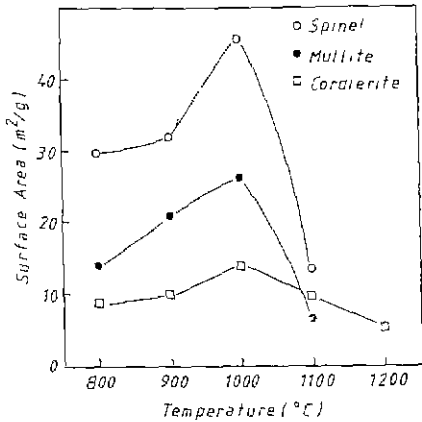


Fig. 15. Changes of the specific surface area with pyrolysis temperature.

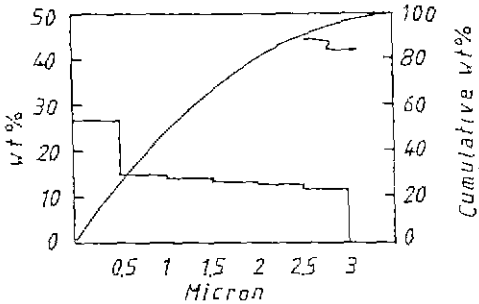


Fig. 16. Particle size distribution of spinel powder prepared at 1000°C.

각 온도에서 합성한 분체들의 비표면적 측정결과를 Fig. 15와 같다. 모든 분체는 합성온도 1000°C 까지 온도가 상승함에 따라 비표면적값이 증가하다가, 1100°C에서는 오히려 감소함을 보이는데, 이것은 분체를 구성하고 있는 입자입자들의 선소결에 기인하는 것으로 생각된다. 각 분체에서 최대값을 보인 1000°C 합성분체의 비표면적값은 spinel, mullite 및 cordierite의 경우 각각 45.9, 25.8 및 13.6 m²/gr이었다.

이중에서 가장 비표면적이 큰 분체인 spinel의 1000°C 합성분체의 입도분포를 Fig. 16에 보였다. 그림에서 알 수 있는 바와같이 1µm 크기 이하의 입자들이 약 40 wt% 이상으로서 대부분을 차지하며, 최대입자 크기가 약 3µm 이고, 평균입자 크기는 1.4µm로 나타났다.

#### 4. 결 론

분무일분해법으로 700~1100°C에서 합성한 spinel, mullite 및 cordierite 분체의 성상 및 그 특성에 관한 연구로부터 다음과 같은 결론을 얻었다

1) Spinel 분체제조 경우 합성온도 800°C 이상에서 단일상의 분체를 얻을 수 있었다. 각 온도에서 합성된 분체들은 TEM 관찰결과 증공상인 구형의 입자형태를 보였으며, 입자의 크기는 submicron에서 약 3µm 정도의 크기분포를 보였다. 비표면적값은 합성온도 1000°C의 분체가 45.9 m²/gr로서 최대값을 보였으며 입도분석결과 1µm 이하의 입자가 약 40 wt% 이상이고, 평균입자 크기는 약 1.4µm이었다

2) Mullite 분체제조 경우 합성온도 800°C 이상에서 단일상의 분체를 얻을 수 있었으며, 입자형태 및 크기 분포도 spinel 분체의 경우와 비슷하였다. 비표면적값도 합성온도 1000°C의 분체가 25.8 m²/gr로서 최대값을 보였다. EDAX 분석결과 Al₂O₃의 무게백분율은 합성온도 800, 900, 1000 및 1100°C에서 각각 70.28, 70.52, 70.44 및 70.37 wt%로 나타났다.

3) Cordierite 조성의 경우 모든 합성온도에서 미결정질이었으며, 이것을 다시 1000°C에서 2시간 하소시킨 결과 µ-와 α-상의 cordierite가 공존하였으며, 1300°C에서 2시간 하소시킨 결과 α-cordierite 단일상으로 결정화하였다. 입자형태는 spinel과 mullite 분체의 경우와 비슷하나, 크기는 약간 더 커서 약 4µm 정도인 입자들도 존재한다. 비표면적값은 1000°C에서 합성한 분체가 최대로서 13.6 m²/gr의 값을 나타내었다.

「감사의 글」

본 연구는 한국과학재단의 연구비에 의해 수행된 것으로서, 이에 심심한 감사를 드리는 바입니다.

#### REFERENCES

1. B. E. Yoldas, "Alumina Sol Preparation from Alkoxides", *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 54(3), 289-90(1975).
2. D. M. Ivrahim et al., "Preparation of Lead Zirconate by a Sol-Gel Method", *Trans. J. Br. Ceram Soc.*, 30, 8-12(1981).

3. D. W. Johnson et al., "Characterization of Freeze-dried Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>", *J. Am. Ceram. Soc.*, **53**(8), 440-44(1970).
4. D. W. Johnson et al., "Kinetics of the Decomposition of Freeze-dried Aluminum Sulfate and Ammonium Sulfate", *J. Am. Ceram. Soc.*, **54**(9), 461-65(1971).
5. G. F. Arroyo et al., "Sintering Behavior of ZrO<sub>2</sub>-CaO Solid Solution Obtained from a Coprecipitation Process", Ceramic Powder Ed. by P. Vincenzini, 469-78(1983).
6. T. Hattori, "Hydrothermal Crystallization of Co-precipitated Hydrous Oxides from Al-Ti Sulfate Solution", *Yogyo-Kyokai-Shi*, **92**(12), 699-706(1984).
7. M. L. Nieser et al., "Ultrafine Metal, Oxides by Decomposition of Salts in a Flame", in Ultrafine Particles Ed. by W. E. Kuhn, Wiley New York, pp 181-95(1963).
8. A. Kato, et al., "Fine Powders by Spray-Pyrolysis Technique. II. Iron Oxide Powders", *粉體および粉末冶金*, **24**(8), 219-22(1977).
9. A. Kato et al., "Fine Powders by Spray-Pyrolysis Technique", *粉體および粉末冶金*, **26**(4), 131-35(1979).
10. Y. Hirata et al., "Formation of  $\beta$ -Type Alumina Powders by Spray-Pyrolysis Technique", *J. Jpn. Chem. Soc.*, **10**, 1309-15(1979).
11. S. Kanzaki et al., "Characterization of Spray Pyrolyzed Spinel Powders", *Yogyo-Kyokai-Shi*, **91**(2), 81-86(1983).
12. G. L. Messing et al., "Characteristics of EDS-Derived Powders", *Science of Ceramics* **12**, pp 117-24(1984).
13. H. Ishizawa et al., "Homogeneous Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Stabilized ZrO<sub>2</sub> Powder by Spray Pyrolysis Method", *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **65**(10), 1399-1404(1986).
14. O. Sakurai et al., "Microstructure of SrTiO<sub>3</sub> Spherical Fine Particles Prepared by Ultrasonic Spray Pyrolysis of Metal Alkoxide", *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94**(8), 813-17(1986).
15. S. Inoue et al., "Preparation of Hydroxy-apatite by Spray-Pyrolysis Technique", *Yogyo-Kyokai-Shi*, **95**(8) 759-63(1987).
16. K. Nagami et al., "Effect of Starting Solution on Microstructure of Spherical SiO<sub>2</sub> Particles Prepared by Ultrasonic Spray Pyrolysis", *Yogyo-Kyokai-Shi*, **95**(7), 682-85(1987).
17. D. J. Shaw, p 65 in Introduction to Colloid and Surface Chemistry, 3rd Ed., Butterworth Co., Ltd., 1980.
18. Y. Tanasawa et al., *Trans. Mech. Eng. Jpn.*, 4-6 Rept., 1-6(1938-40).