B11

CVC공정으로 합성한 TiO_2 나노입자의 실시간 입자특성평가

(Real-time particle characterization of TiO_2 nanoparticle synthesized by CVC Process)

한양대학교 이창우*, 임성순, 유지훈, 이재성

1. 서론

화학기상응축공정(Chemical Vapor Condensation Process, CVC)의 우수성은 제조된 분말의 뛰어난 특성과 연속공정에 의한 대량생산의 가능성을 통하여 이미 많은 연구자들에 의해 보고되었다. 하지만 공정변수에 따른 입자들의 거동이 분말의 형성과 요구하는 분말의 특성을 좌우함에도 불구하고 기존의 연구에서는 합성된 분말의 특성과 응용에 대한 내용을 주로 다루고 있어 반응기 내에서 일어나는 입자거동에 대한 결정적인 증거를 제시하지 못하였다. 최근 Yu등[1]은 반응관 내에서 전구체와 O_2의 유량에 따른 입자의 거동을 실시간으로 분석하여 CVC 공정에서 일어나는 입자성장이 합체과정에 의하여 일어남을 확인하였다. 이에 본 연구에서는 기존의 연구를 바탕으로 최적화된 전구체와 O_2의 유량조건에서 반응온도에 따른 입자거동의 변화를 실시간으로 분석하였고 입자성장의 기구를 고찰하였다. 또한 각 조건에서 반응인자(과포화도, 응축증기분자의 농도, 충돌률, 체류시간)들을 계산함으로써 실시간 입자특성평가 결과를 뒷받침하고자 하였다.

2. 실험방법

TiO_2 나노분말 제조를 위한 전구체로서 titanium-tetrapropoxide (TTIP, 99.999%)를 사용하였다. 전구체의 기화온도는 250℃, 수송기체인 He과 반응기체인 O_2의 유량은 각각 1 lpm과 4 lpm으로 유지하였다. 전구체 유량과 반응온도에 따른 입도분포, 응집도와 입자거동의 변화를 조사하기 위하여, 전구체 유량은 0.376~0.752 ml/min, 반응온도는 700~1000℃의 범위에서 변화시켰다. 이때 반응기내의 압력은 상압으로 유지하였다. SMPS를 통한 입도측정 범위는 9.31~305 nm로 정하였다. 생성된 분말의 상분율은 XRD, 입자의 비표면적은 BET분석을 통하여 구하였고 분말의 형상과 응집도는 TEM을 통하여 관찰하여 실시간 입자특성평가 결과와 비교, 분석하였다.

3. 실험결과 및 고찰

SMPS를 이용하여 일정한 크기로 분급된 입자들의 단위부피당 개수를 측정한 결과, 반응온도가 증가함에 따라서 평균입도가 증가하였고, 입도분포가 좁아지는 경향을 나타내었다. 전구체 유량이 낮은 0.376 ml/min의 경우, 반응온도가 증가하면서 평균입도에 해당하는 입자의 개수가 증가하는 경향을 나타내었다. 0.752 ml/min의 전구체 유량 조건에서도 비슷한 경향을 나타냈으며, 온도 1000℃에서는 특이하게 입도분포가 넓어지는 결과를 나타내어 측정범위 이상의 크기를 갖는 입자들이 존재하고 있음을 알 수 있었다. 한편, 반응온도가 증가하면서 각각의 반응인자들은 감소하였다. 이는 입자크기의 감소를 나타내며, 계산시 온도 증가에 따른 활발한 입자의 소결현상을 고려하지 못했기 때문인 것으로 생각된다. 결과적으로

입자들의 성장은 합체과정과 소결현상에 의해 동시에 영향을 받게되는 것으로 판단되며, 전구체 유량의 증가시에는 합체과정이, 반응온도의 증가시에는 소결현상이 주도적으로 입자의 성장에 영향을 미치는 것으로 생각된다. XRD 분석결과 반응온도가 증가할수록 rutile상의 부피분율이 증가하여 anatase상에서 고온안정상인 rutile상으로 상변태를 일으키는 것을 알 수 있었다. BET 분석결과, 반응온도가 증가할수록 입자의 비표면적이 감소하였다. TEM 관찰결과 입자들은 구형에 가까운 형상을 하고 있었으며 반응온도가 증가함에 따라서 입도와 응집도가 증가하는 것을 관찰하였다.

4. Reference

J. H. Yu, J. S. Lee and K. H. Ahn : Scripta Materialia, 44 (2001) 2213.