

부분 가수분해된 TEOS 및 중축합 에틸실리케이트(CES)로부터 합성된 Mullite 전구체 분말 특성 비교

서신석 · 이산영 · 이범재 · 김동표 · 노재성

충남대학교 공과대학 정밀공업화학과

(1996년 2월 17일 접수)

Properties and Synthesis of Mullite Precursor using an Economic Condensed Ethyl Silicate (CES) or Partially Hydrolyzed TEOS

Shin-Seok Seo, Shin-Young Lee, Beom-Jae Lee, Dong-Pyo Kim and Jae-Seong Rho

Dept. of Fine Chemicals Eng. and Chemistry, College of Eng.,

Chungnam Nat. Univ., Taejeon 305-764, Korea

(Received February 17, 1996)

요 약

졸-겔법에 의한 균일조성의 mullite($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$) 전구체 분말을 합성하기 위해 SiO_2 원으로는 중축합 에틸실리케이트(CES)와 부분 가수분해된 TEOS(partially hydrolyzed TEOS)를 사용하였으며, Al_2O_3 원으로는 알루미늄 이소프로폭사이드를 사용 하였다. 경제적인 SiO_2 원으로 사용된 CES는 $SiCl_4$ 와 7.0 wt%의 수분이 함유된 에틸알코올로부터 합성 하였다. CES로부터 합성된 mullite 전구체 분말은 TEOS의 부분가수분해공정에 의해 제조된 mullite보다 $200^\circ C$ 낮은 $1000^\circ C$ 에서 mullite 결정상을 확인할 수 있었으며, 합성 시간을 1/2 이상 단축 시켰다. 합성된 건조겔의 입경은 $0.05 \sim 0.1 \mu m$ 로 미세한 구형상의 입자였으며, 비표면적은 약 $290 m^2/g$ 로 $800^\circ C$ 이후 급격한 감소 변화를 보였다. 합성된 건조분말의 XRD, FT-IR, EDS 및 ICP 분석결과 $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ 의 화학양론조성을 가진 균질한 mullite 분말임을 확인하였다.

ABSTRACT

The economic precursor of mullite ($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$) was prepared by sol-gel method from condensed ethyl silicate (CES) or partially hydrolyzed TEOS and aluminum isopropoxide as sources of SiO_2 and Al_2O_3 , respectively. The CES was synthesized from $SiCl_4$ and C_2H_5OH including 7.0 wt% of H_2O . In this study mullite from the CES was formed at $1000^\circ C$ even without long hydrolysis step while mullite from partially hydrolyzed TEOS was obtained at $1200^\circ C$. The mullite produced from the CES was spherical shape of fine powder which was in range of $0.05 \sim 0.1 \mu m$ in size. The specific surface area of dried gel was about $290 m^2/g$, and rapidly reduced above $800^\circ C$. In addition, the dried gel and the mullite powder were investigated by XRD, FT-IR, EDS and ICP.

Key words: Sol-gel method, Condensed ethylsilicate, TEOS, Mullite precursor, Partially hydrolyzed TEOS

1. 서 론

Mullite($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$)는 점토질 내화물을 구성하는 중요한 결정상으로써 고온에서의 기계적 특성 저하가 적고, 열팽창이 비교적 적으며 유전율이 낮고 내크립성 및 내화학적성이 우수한 고온 구조세라믹 화합물이다¹⁾. 종래에는 공업적으로 카올린($2SiO_2 \cdot Al_2O_3 \cdot 2H_2O$)등을 원료로 하여 mullite를 제조하였는데 이들 고상반응에 의한

mullite 제조시 많은 불순물의 함유로 인해 그 뛰어난 열적, 기계적 특성등이 저하되는 원인이 되어 좀더 고순도이며 조성이 균일한 mullite 분말 합성 방법들이 요구 되어져 왔으며, 이에 따른 여러 출발물질 방법등도 연구되어져 왔다²⁻⁵⁾.

특히 최근에는 금속알콕사이드로부터 졸-겔법에 의한 고순도 mullite 제조 방법이 많이 이용되어져 왔는데, Hirata⁶⁾ 등은 알루미늄 이소프로폭사이드(aluminum isopro-

poxide)와 TEOS(tetraethyl ortho silicate)를 화학양론 조성($3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$)으로 혼합하고 가수분해 및 열처리하여 분말을 합성한 결과 이는 mullite 화학양론 조성이 아닌 $2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ 에 가까운 화학조성이 나타남을 알았다. 그 원인을 Saito³⁾등은 알루미늄알루미늄옥사이드와 실리콘알루미늄옥사이드와의 가수분해속도가 다르기 때문이라고 하였으며 이들 문제점을 해결하기 위해 부분가수분해법을 구사함으로써 화학양론 조성의 균질한 mullite 분말을 합성하였다. 즉, 두 알루미나를 혼합하기 전에 가수분해 속도가 느린 TEOS를 미리 부분적으로 가수분해시킨 후 2차적으로 알루미늄 알루미나를 혼합하는 혼합가수분해법을 택함으로써 균질한 mullite 분말을 합성하였다. 그러나 이 반응은 TEOS를 부분가수분해시키는데 약 50~100시간 정도의 합성시간이 요구되고 있으며, 출발원료가 高價라는 단점을 가지고 있다.

최근 본 연구팀의 기 연구결과²⁾에 의하면 TEOS 합성과정에서 사염화실리콘과 에틸알코올의 건조상태 및 합성공정상의 수분격리 조건에 따라 TEOS의 수율이 크게 좌우되며, 에틸알콜에 수분이 1.0 wt% 이상 존재하면 생성물로부터 TEOS를 분리할 수 없으며 수분으로 인해 부분적으로 중축합된 에틸실리케이트(condensed ethylsilicate ; CES)가 다량 생성됨을 알았으며, 이 CES의 용도개발을 위한 기초실험으로 부분가수분해시킨 TEOS³⁾ (partially hydrolyzed TEOS ; PHT)와의 졸-겔 전이 거동 및 물성을 상호 비교해 본 결과 매우 유사함을 알게 되었다. 또한, 고순도 TEOS로의 전환을 위한 저급 TEOS 정제시에도 20~30% 정도의 CES가 부산물로 발생되므로써 이들 CES의 공업적인 용도 개발이 요구되고 있다.

따라서 본 연구에서는 중진 졸-겔법에 의한 고순도 mullite 제조시 SiO_2 원으로 사용되는 PHT 대신 CES를 SiO_2 원으로 사용함으로써 균일한 화학양론조성의 mullite 전구체 분말을 보다 경제적이고 간편하게 합성하고자 하였으며, 열처리하여 얻은 고순도 mullite 분말의 특성을 고찰 하였다.

2. 실험방법

2.1. Al_2O_3 - SiO_2 계 분말의 합성

Mullite 전구체 분말 제조시 사용될 출발원료로서 Al_2O_3 원으로는 알루미늄 이소프로폭사이드(Junsei Chemical Co., >99.0%)를 사용하였으며, SiO_2 원으로는 PHT와 CES를 각각 사용하였다. 그 합성방법은 다음과 같다.

2.1.1. CES 및 PHT의 합성

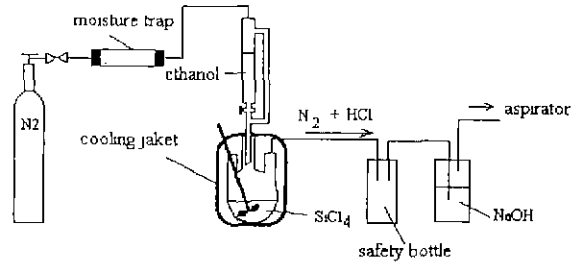


Fig. 1. Reaction apparatus for the synthesis of CES.

SiO_2 원으로 사용될 CES의 제조를 위해 특급의 사염화실리콘(Janssen Co., >99.8%)과 시약급 에틸알코올(국내 J사, 94.9 v/v%)을 사용하였으며, 합성장치는 Fig. 1에 나타내었다.

CES의 합성은 수분이 제어된 질소가스 분위기하에서 행하였으며, 사염화실리콘 34 ml를 둥근 3구 플라스크에 정량하여 넣은 후 교반하면서 수분이 7.0 wt.%로 조절된 시약급 에틸알코올 46 ml를 2 ml/min 속도로 반응기에 서서히 적하하여 0°C에서 1시간동안 반응시켰다. 발열반응으로 생성되는 열은 냉각조에 의해 제거하였고, 합성시 발생되는 염화수소가스는 건조제를 통과한 질소가스에 의해 제거하였다. 합성후 무수에틸알콜로 희석하여 25 wt%의 CES 용액을 합성하였다.

또한, PHT의 합성은 Saito³⁾에 의해 개발된 부분가수분해법에 따라 $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4 : \text{C}_2\text{H}_5\text{OH} : \text{H}_2\text{O} : \text{HCl} = 1 : 4 : 2 : 0.01$ 조성몰비로 70°C에서 72시간 동안 환류시켜 합성하였다. 합성된 CES 및 PHT의 SiO_2 함량을 측정하기 위해 각각의 시료 100 g에 30% 암모니아수를 가해 완전하게 SiO_2 겔로 전환시킨 후, 여기서 얻어진 SiO_2 겔의 잔존 휘발성분을 600°C에서 1시간 동안 열처리 제거한 후 측정된 결과 CES 및 PHT의 SiO_2 함량은 각각 17.3과 14.0%를 나타냈다. 또한 CES 및 PHT의 수평균분자량 측정을 위해 시료내에 존재하는 OH나 OR기들을 헥사메틸디실록산을 이용하여 trimethylsilyl ($-\text{OSi}(\text{CH}_3)_3$)기로 capping 함으로써 각각의 용액을 화학적으로 안정화 시킨후 멘젠을 용매로 하여 빙점장하법에 의해 측정하였다.

2.1.2. Mullite 전구체 분말의 합성

Fig. 2에 mullite 전구체 분말 합성 공정도를 나타내었으며, SiO_2 출발물질로 PHT를 사용한 경우는 M1, CES를 사용한 경우는 M2로 명명하였다.

Mullite 전구체 분말 합성을 위하여 이소프로필알코올 288 ml에 알루미늄 이소프로폭사이드 24.5 g을 70°C에서 2시간 동안 용해시킨후 PHT 및 CES 용액을 $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2$

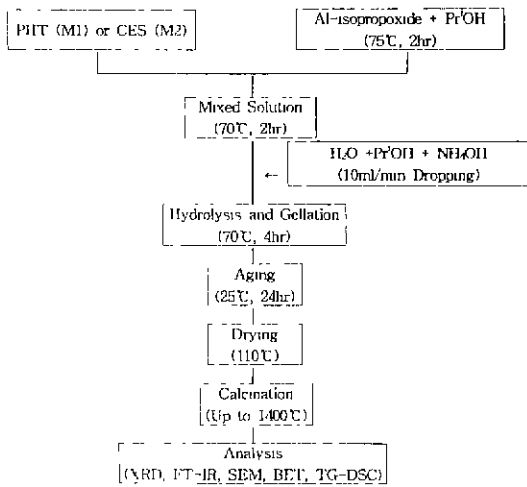


Fig. 2. Schematic diagram for the preparation of mullite powders.

= 3 : 2몰이 되도록 각각 정량하여 혼합한 후 70°C에서 2시간 동안 격렬히 교반하면서 액상 혼합시켰다. 혼합후 가수분해에 필요한 물 14.4 ml와 이소프로필알코올 72 ml, NH₄OH 0.1 g을 균일 혼합하여 반응물에 10 ml/min 속도로 서서히 적하시켰다. 반응물은 70°C에서 4시간동안 계속 교반해 주었으며, 미반응물의 완전한 가수분해를 위해 상온에서 24시간 동안 숙성시켰다. 합성된 졸용액 M1과 M2의 pH는 각각 9.8과 6.0을 나타내었으며, 이들 용액을 110°C에서 건조하여 mullite 전구체 분말 M1과 M2를 합성하였다.

합성하여 얻은 건조겔 M1과 M2는 각각 600~1400°C 범위에서 1시간 동안 하소하였으며, 이들 하소온도에 따른 분말특성을 상호 비교 조사하였다.

2.2. 분석 및 측정 방법

2.2.1. TG-DSC 분석

합성된 건조 겔 분말의 온도변화에 따른 열간변화 및 중량감소 등을 조사하기 위하여 공기분위기 하에서 1450°C까지 10°C/min의 속도로 승온시키면서 TG-DSC (Model STA 409, NETZSCH) 분석을 행하였다.

2.2.2. X-선 회절분석

합성된 건조겔과 이 분말의 하소온도에 따른 생성상의 구조변화를 관찰하기 위해 600~1400°C에서 하소한 각각의 분말을 X선 회절분석기(Model PW-1710, PHILIPS Co.)로 CuK α , 40 kV-20 mA, Scan speed 4°/min 조건 하에 회절각(2 θ) 10~60° 범위에서 분석하였다.

2.2.3. FT-IR 분석

건조겔 분말의 하소온도에 따른 결합상태 변화를 관찰하기 위하여 FT-IR spectroscopy(MIDAC Co., USA)를 사용하여 KBr 법으로 적외선 분광분석을 행하였으며, 측정범위는 400~1300 cm⁻¹의 파수에서 측정하였다.

2.2.4. 비표면적 측정

합성된 건조겔의 열처리 온도에 따른 비표면적 변화를 BET(MODEL AUTOSORB-1)법으로 150°C에서 12시간 건조후 측정하였다.

2.2.5. 미세구조 관찰

합성된 건조겔과 하소한 분말의 입자크기와 형태를 관찰하기 위해 주사전자현미경(Akashi Co., Japan)을 사용하였다.

2.2.6. EDS, ICP 분석

하소한 분말의 화학조성은 전자분산분광(EDS ; Akashi Co., Japan) 분석을 통해 살펴보았으며, 순도는 유도플라즈마분광분석(ICP/AES)에 의해 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Al₂O₃-SiO₂계 분말의 특성

3.1.1. TG-DSC 분석

Mullite 전구체 분말의 SiO₂ 원으로 PHT 및 CES를 출발원료로 하여 합성한 건조겔의 열간변화와 결정 생성 온도 등을 알아보기 위하여 행한 TG/DSC 분석 결과를 Fig. 3에 각각 나타내었다.

SiO₂ 원으로 PHT 및 CES를 출발원료로 한 각각의 건조 분말 M1, M2의 경우, 100~250°C의 온도범위에서 흡착수 및 OH⁻기의 탈리에 의한 흡열피크가 나타났으며, 300~600°C에 잔류유기물의 연소에 기인한 넓은 발열피크가 관찰되었다. 또한 M1에서는 994°C 부근에서, M2에서는 987°C 부근에서 각각 발열피크가 관찰되었는데 이는 후의 X선 회절 분석 결과(Fig. 4), 비정질 상태의 건조겔 분말이 Al-Si 스피넬상으로서의 결정전이에 의한 것으로 사료되며, M2의 경우 M1에 비해 상당히 예리하고 강도가 큰 발열피크가 나타났는데, 이는 Al-Si 스피넬상과 더불어 정방정계 mullite 결정상이 동시에 형성되었기 때문으로 사료된다^{8,9)}. 또한 M2의 1250°C 부근에서 나타나는 완만한 발열 피크는 잔존하는 미량의 Al-Si 스피넬상과 정방정계 mullite 결정상이 사방정계 mullite 결정상으로 완전 전이되어 나타나는 피크로 사료된다⁹⁾.

또한 TG 측정결과, 600°C까지의 대부분의 중량감소는 흡착수, 결정수, 알코올의 탈리 및 유기물의 산화분해에 기인한 것으로 500°C 이하의 저온에서 큰 중량감

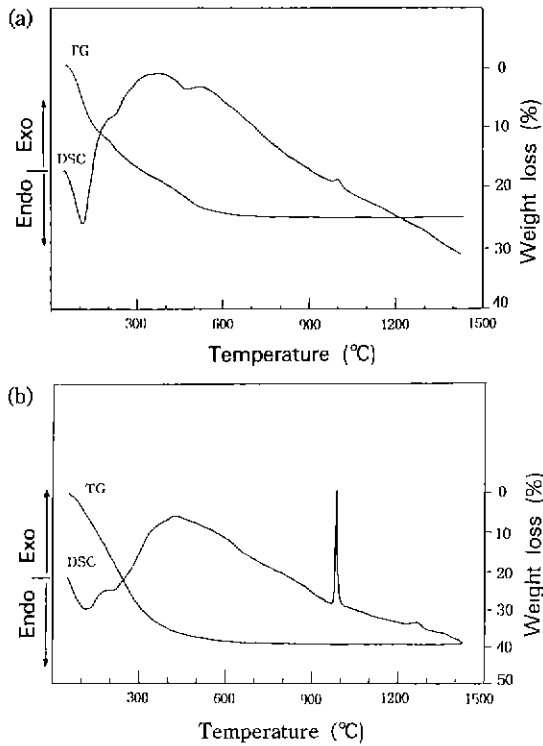


Fig. 3. TG-DSC curves of dried gel. (a) M1, and (b) M2

소를 보였으며, 전체무게 감량은 800°C까지 각각 25.7%와 40.3%이었다. M2가 M1에 비해 상대적으로 중량감소가 큰 이유는 초기 출발물질로 사용했던 PHT와 CES의 pH에 기인한 것⁴⁾으로 합성 졸의 pH가 낮을수록 입자 핵생성의 기회가 적어지고 이로 인한 미반응 알콕사이드가 많게 되어 건조열의 중량감소는 크게 나타난다. 즉, M2의 경우 CES 합성시 잔존하고 있는 열화수소로 인해 M1의 졸 용액보다 상대적으로 pH가 낮아 보다 많은 중량감소를 나타낸 것으로 보인다.

3.1.2. XRD, FT-IR 분석

본 연구에서 PHT로 부터 합성한 젤분말 M1과 CES로 부터 합성한 젤분말 M2를 800~1400°C의 온도에서 각각 1시간 동안 하소한 분말의 상변화관찰을 위한 XRD 분석 결과를 Fig. 4에 나타내었다.

젤분말 M1과 M2 모두 800°C에서 비정질상태를 나타내고 있으며, M1의 경우, 1000°C에서 Al-Si 스피넬상이 확인되었고, 1200°C에서 미량의 스피넬상을 함유한 mullite상이 확인 되었으며, 1400°C에서 mullite 단일상만이 확인되었다. 반면 M2의 경우 M1보다 200°C가 낮은 1000°C에서 스피넬상과 함께 mullite 결정상이 확인되었

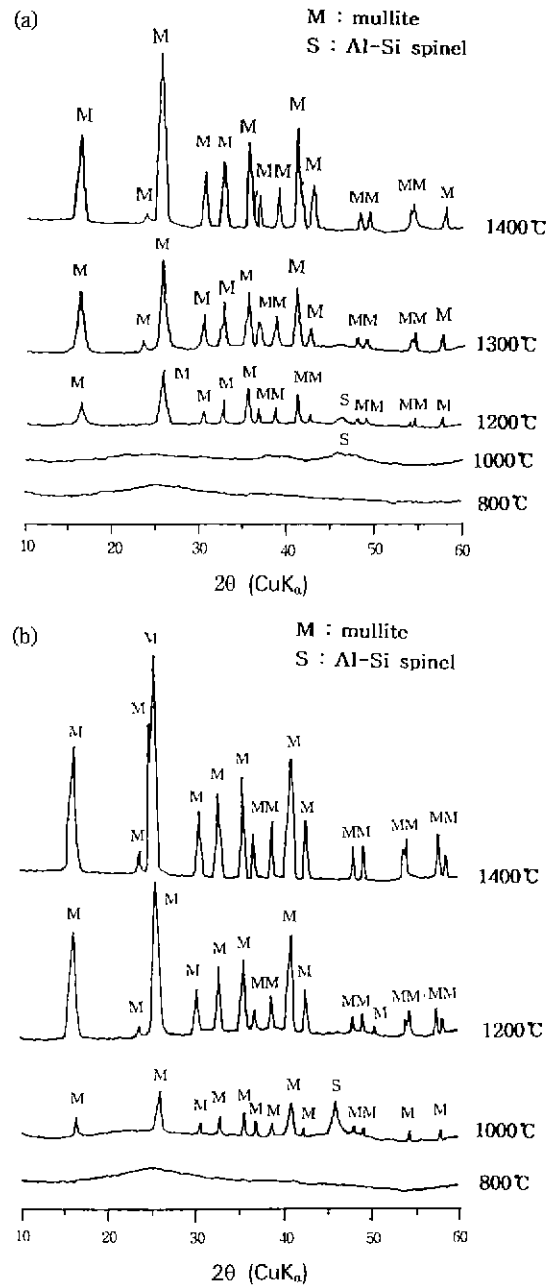


Fig. 4. X-ray diffraction patterns of (a) M1 and (b) M2 powders calcined at various temperatures.

으며, 1200°C 이상에서 mullite 단일상만이 확인되었다. 그후 1400°C까지 온도가 증가함에 따라 mullite 결정상의 발달로 피크가 예리해졌으며, 다른 결정의 생성이나 분해는 없었다. 이는 위의 DSC 분석 결과와 일치함을 알 수 있다. 또한 M2가 M1보다 mullite 결정화 온도가 낮은

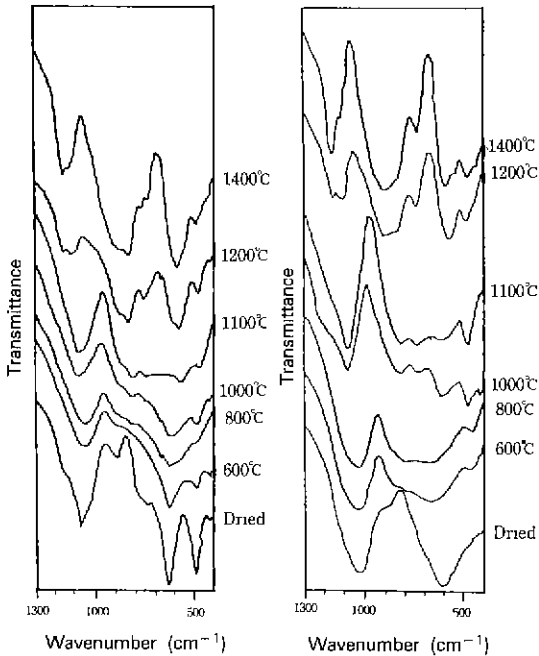


Fig. 5. FT-IR spectra of (a) M1 and (b) M2 powders calcined at various temperatures.

이유는 SiO₂ 원으로 사용한 PHT와 CES의 중합도 차이에 기인한 것으로, SiO₂ 성분을 저중합 상태에서 공침시킬수록 mullite로의 반응 촉진에 효과적일 것으로 보고되고 있다¹⁰. 즉, 본 연구팀의 기 실험에 의한 PHT와 CES의 초기 수평균 분자량 측정 결과 각각 2100과 930으로서 CES가 다소 저중합 상태로 존재하기 때문에 알루미늄 이소프로폭사이드 용액과의 혼합시 보다 균일하고 미세한 혼합상태에 이르렀을 것으로 보인다.

Fig. 5는 각 온도에서 1시간동안 하소한 M1, M2 분체의 FT-IR 스펙트럼을 나타낸 것이다. 건조젤에서의 1,049 cm⁻¹ 부근의 흡수대는 tetrahedral Si-O-Al 신축진동에 의한 것으로서 그 위치가 비정질상태에서는 1,049 cm⁻¹에서 나타나다가 mullite화에 의하여 1,173 cm⁻¹ 부근으로 이동하여 강하게 나타남을 알 수 있다¹¹. 1000°C에서 하소한 시료 M1과 M2의 tetrahedral Si-O-Al 신축진동의 흡수대는 각각 1069 cm⁻¹와 1104 cm⁻¹로 M2의 경우가 M1보다 조금 더 왼쪽으로 이동된 것으로 보아 mullite화로의 전이가 M1보다 더 진행되었음을 예상할 수 있으며, 이는 XRD 분석결과와 일치하였다. 건조젤에서의 887 cm⁻¹ 부근의 흡수대는 Si-OH 결합에 의한 것으로 열처리에 의해 사라졌으며, 전형적인 amorphous SiO₂-Al₂O₃계의 IR 스펙트럼을 보였다⁶. 500~900 cm⁻¹

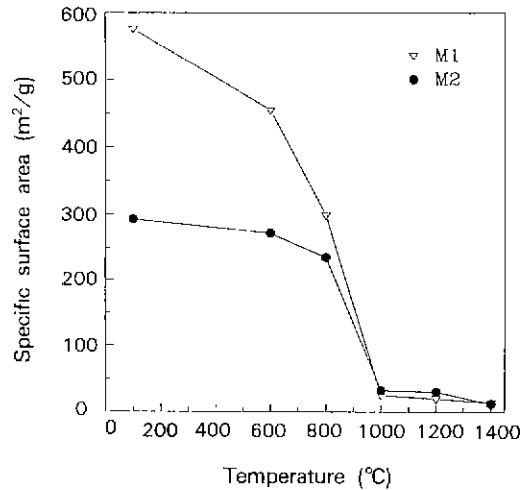


Fig. 6. Specific surface area of mullite precursors as a function of heat treatment temperatures.

범위에 있는 흡수대는 octahedral Al-O bond 및 tetrahedral Al-O bond와 연관이 있다. octahedral Al-O bond의 경우 500~680 cm⁻¹에 나타나며, tetrahedral Al-O bond의 경우 650~900 cm⁻¹ 범위에서 나타나는데, mullite화로의 전이를 위해서는 octahedral Al-O bond가 tetrahedral Al-O bond로의 전이가 필요하다¹². 따라서 본 연구에서 합성한 건조젤 분말 M1과 M2의 Al-O bond를 비교해 본 결과, 600 cm⁻¹ 부근의 파수는 octahedral Al-O bond로서, 600°C, 800°C로 열처리 함에 따라 M2의 경우 tetrahedral Al-O bond로의 전이가 보이는 반면, M1의 경우 800°C 이하에서는 전이가 일어나지 않았으며 1000°C에서 약간의 tetrahedral Al-O bond 흡수대가 생성되었다. 1000°C 이후 부터 Al-Si spinel 결정에서 mullite 결정으로 바뀌어짐에 따라 전형적인 mullite 흡수대가 나타남을 알 수 있었으며, 이는 Mackenzie¹³의 제안에 의한 mullite 흡수대와 잘 일치하였으며, X선 회절 결과와도 일치하였다.

3.1.3. 하소 분말의 비표면적 및 순도 측정

Fig. 6은 건조젤 분말의 열처리 온도에 따른 비표면적 변화 결과로서, M1 및 M2 건조젤 분말의 비표면적은 각각 576 m²/g과 293 m²/g로 M1이 M2보다 더욱 많은 미세 기공을 형성하고 있음을 알 수 있다. 이는 합성졸의 pH에 기인한 것으로 M2의 경우 CES 합성시 완전히 제거되지 않은 잔존 열화수소의 영향에 의해 겔분말 건조시 과도한 수축으로 미세 pore 구조가 붕괴되기 때문인 것으로 사료된다. 또한 열처리온도가 증가함에 따라 비표면적은 감소하며, Al-Si spinel상 및 mullite가

Table 1. Element Analysis for Impurities in the Mullite Powder (unit: wt%)

Sample	Na ₂ O	MgO	CaO	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	K ₂ O	Sum
M1	0.0523	0.0005	0.0017	0.0012	0.0109	—	0.0666
M2	0.0518	0.0005	0.0015	0.0013	0.0126	—	0.0677

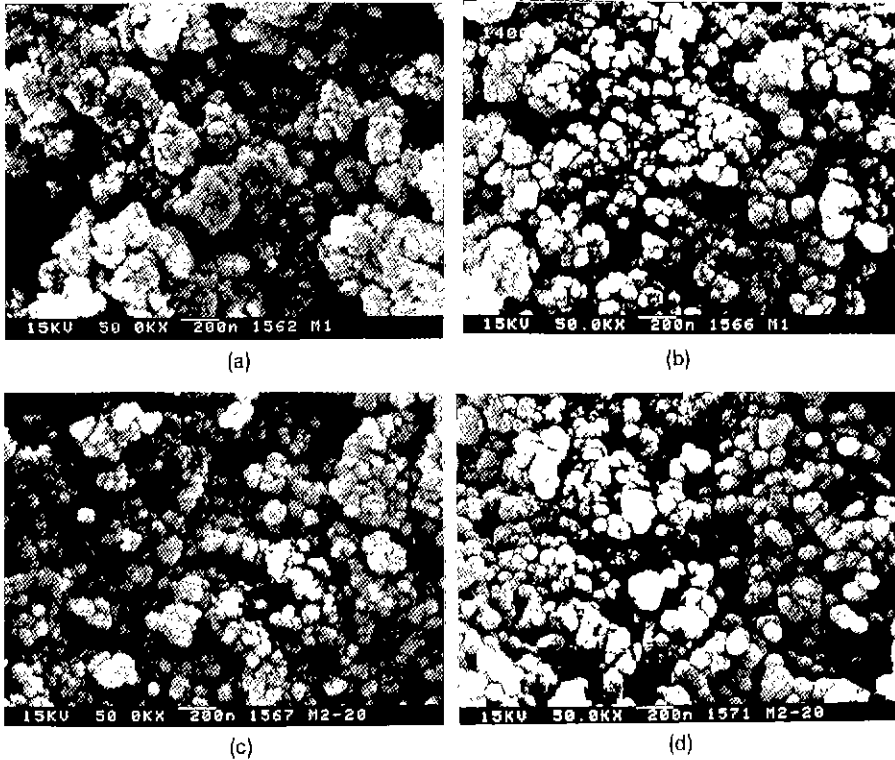


Fig. 7. SEM photographs of dried gels and mullite powders.
(a) M1-dried, (b) M1-1400°C, (c) M2-dried, (d) M2-1400°C

생성되는 1000°C 부근에서는 M1, M2 모두 33 m²/g로 급격히 감소하였다. 그후 1400°C까지 열처리에 의한 입자들의 응집으로 인해 서서히 감소하여 12 m²/g의 비표면적을 가졌다. 하소 온도가 800°C 이상이 되면서 급격한 비표면적 감소가 일어나는데 이는 미세하고 비표면적이 큰 열분해 생성물이, 결합이나 응력이 많아 과잉의 물리적 에너지를 가지므로서 2차 입자를 형성하기 때문이며, 이후 입자의 결정화에 가인한 것으로 사료된다. 따라서 겔표면의 높은 자유에너지를 소결의 구동력으로 이용하여 mullite 이론 밀도에 가까운 소결체를 얻기 위한 적정 하소 온도는 800°C 이하임을 알 수 있다³⁾. 이 이상의 온도에서의 하소는 분말의 비표면적을 현격히 감소시킴으로써 소결성을 저하시키는 원인이 될 수 있다. 본 연구에서 합성한 건조겔을 600°C에서 1시간 동안

하소한 전구체 분말의 순도를 Table 1에 나타내었다. 양이온 금속 불순물의 측정 결과, M1과 M2의 순도는 99.93%로 고순도 mullite 전구체 분말임을 알 수 있다.

3.1.4. 미세 구조 관찰 및 EDS 분석

Fig. 7은 건조겔과 1400°C에서 하소한 분말의 형태를 관찰하기 위한 주사전자현미경 사진이다. 건조겔의 경우, 0.05~0.10 μm 크기의 미세하고 균일한 size의 구형입자들이 응집한 형태로 구성되어 있으며, 1400°C에서 하소한 분말의 경우, 열처리에 의한 입자들간의 응집소결 및 mullite 결정 성장으로 인해 구형 입자경이 0.1~0.2 μm 크기로 미소하게 증가됨이 관찰되었고 부피수축으로 인한 입자간 기공도가 증가되었다.

Fig. 8은 1400°C에서 하소한 M2 분말의 Al₂O₃와 SiO₂의 조성비율을 측정하기 위해 EDS 분석을 행한 결과이며,

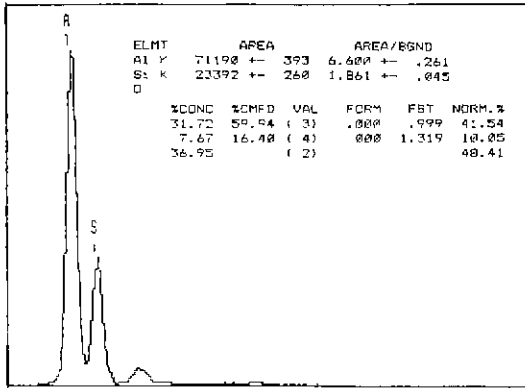


Fig. 8. EDS analysis of M2 powder sintered at 1400°C for 1 hr.

분석 결과 Al₂O₃는 72.7 wt.%, SiO₂는 27.3 wt.%로 화학양론 조성의 값과 약 1 wt.% 정도 차이를 보이는 것으로 화학양론 조성의 mullite(3Al₂O₃·2SiO₂) 분말임을 확인하였다.

4. 결 론

본 연구에서 졸-겔법에 의한 고순도 mullite 전구체 분말 합성시 SiO₂ 원으로 사용되는 부분가수분해시킨 TEOS(PHT) 대신에 SiCl₄와 시약급 에틸알코올로 부터 합성한 중축합 에틸실리케이트(CES)로부터 mullite 전구체 분말을 합성한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 부분가수분해법의 개념을 도입한 PHT 대신 CES를 이용함으로써 값비싼 TEOS의 부분가수분해 공정을 거치지 않고 경제적으로 mullite 전구체 분말을 합성할 수 있었다.

2. PHT보다 중합도가 낮은 CES를 이용하여 합성한 M2 분말의 경우, M1보다 균일하고 미세한 액상 혼합도를 가짐으로써 종래 금속알콕사이드를 이용한 mullite 결정 생성온도 보다 200°C 정도 낮은 1000°C에서 Al-Si 스피넬상과 함께 mullite 결정상을 확인할 수 있었으며, 1200°C 이후 부터는 mullite 단일상만이 존재하였다.

3. 본 연구에서 합성된 건조젤의 입형은 구형이며, 비표면적은 292.6 m²/g, 입자크기는 0.05~0.10 μm로 매우 미세하였다. 또한 800°C 이후 비표면적의 급격한 감소로 보아 이론 밀도의 소결체를 얻기 위한 건조젤의 적정 하소 온도는 800°C 임을 알 수 있다.

4. EDS 및 ICP 측정으로부터, 본 연구에서 합성된

건조젤 분말은 3Al₂O₃·2SiO₂의 균질한 화학양론 조성을 가지는 고순도(99.93 wt.%) mullite 분말임을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 1995년도 한국과학재단 산학협력연구과제(과제번호 : 95-1-10-05-01-2) 연구비 지원에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. P.C. Dokko, J.A. Pask and K.S. Mazdiyassni, "High-Temperature Mechanical Properties of Mullite Under Compression," *J. Am. Ceram. Soc.*, **60**(3-4), 150-155 (1977).
2. K. Okada, N. Otsuka and S. Somiya, "Review of Mullite Synthesis Routes in Japan," *Am. Ceram Soc Bull.*, **70**(10), 1633-1640 (1991)
3. H. Saito and H. Suzuki, "Processing of the Fine Mullite Powder from Metal-Alkoxides and Its Sintering," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **95**(7), 697-702 (1987).
4. D.W. Hoffman, R. Roy and S. Komarnenu, "Diphasic Xerogels, A New Glass of Materials:Phases in the System," *J Am Ceram Soc.*, **67**(7), 468-471 (1984).
5. 林磁牛, 大津賀望, 秋山勝徳, 岡田満, 矢野豊彦, "Preparation of Diopside Fine Powders by Spray Pyrolysis and Its Sinterability," *日本セラミックス 學術論文誌*, **97**(7), 742-746 (1989).
6. Y. Hirata, H.Minamizono and K. Shimada, "Property of SiO₂-Al₂O₃ Powders Prepared from Metal Alkoxide," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **93**(1), 46-54 (1985).
7. 노재성, 조현영, 최정봉, "TEOS와 Condensed Ethyl Silicate(CES)로부터 제조된 고순도 SiO₂ 분말의 특성," *충남대학교 산업기술연구소 논문집*, **9**, 218-238 (1994)
8. Y. Zhou, P. Grobet and O. van der Biest, "Sol-Gel and Microwave Processing of Mullite," *Fourth Euro Ceramics*, **1**, 145-153 (1995).
9. K Hamano, T. Sato and Z. Nakagawa, "Properties of Mullite Powder Prepared by Coprecipitation and Microstructure of Fired Bodies," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94**(8), 818-821 (1986)
10. K. Okada, "Mullite Ceramics- Reviewed from its Raw Materials to Properties-," *TAIKABUTSU*, **44**(12), 708-719 (1992).
11. K.J.D. Mackenzie, "Infrared Frequency Calculations for Ideal Mullite." *J. Am. Ceram. Soc.*, **55**(2), 68-71 (1972).