

알콕사이드로부터 Al_2O_3 - TiO_2 계 복합분체의 합성(1) 1. Sol-Gel법에 의한 Al_2TiO_5 의 분말합성과 첨가제의 영향

정종열 · 이형민 · 이홍립
연세대학교 세라믹공학과
(1996년 7월 3일 접수)

Preparation of Al_2O_3 - TiO_2 Composite Powder from Alkoxides (1)

1. Preparation of Al_2TiO_5 by the Sol-Gel Method and the Effects of Additives

Jong Yeol Jeong, Hyung Min Lee and Hong Lim Lee

Dept. of Ceramic Eng., Yonsei Univ., 134, Shmchon-Dong, Seodaemun-Ku, Seoul, 120-749, Korea

(Received July 3, 1996)

요 약

Aluminium sec-butoxide($Al(OC_4H_9)_3$)와 tetraethyl orthotitanate($Ti(OC_2H_5)_4$)를 출발물질로 하는 sol-gel 법에 의하여 Al_2TiO_5 분말을 제조하였을 때, 이 분말은 대부분이 $1.5 \mu m$ 이하의 입경을 가지며 90% 이상이 $1 \mu m$ 이하의 입경을 가지는 것으로 나타났으며 매우 좁은 입도분포를 나타내었다. 또한 상용의 Al_2O_3 와 TiO_2 의 혼합분말을 sol-gel 법에서와 같은 조건으로 열처리하여 제조한 Al_2TiO_5 분말은 $0.5 \mu m$ 에서부터 $7 \mu m$ 에 이르는 비교적 넓은 입도 분포를 나타내었으며 입경이 $1 \mu m$ 이하인 분말은 60%이고 $2.5 \mu m$ 이하인 분말은 90%로서 졸겔법으로 제조한 분말이 혼합분말을 열처리하여 제조한 분말보다 훨씬 좁은 입도분포와 미세한 입자크기를 가지는 것을 확인할 수 있었다. sol-gel 법으로 제조한 분말은 또한 소결하였을 경우에는 미세균열의 감소로 인하여 상용분말로 부터 제조한 것에 비하여 보다 높은 밀도값을 나타내었다. mullite와 Al_2O_3 를 2차상상으로 첨가하였을 때 Al_2TiO_5 의 입 성장을 억제하는 역할을 하여 미세균열이 감소하는 것을 관찰하였다.

ABSTRACT

Al_2TiO_5 powder was prepared by the sol-gel processing from the metal alkoxides, aluminium sec-butoxide ($Al(OC_4H_9)_3$) and tetraethyl orthotitanate ($Ti(OC_2H_5)_4$). The particles of Al_2TiO_5 produced from alkoxides were measured to be below $1.5 \mu m$ and more than 90% were below $1 \mu m$, however, those from commercial alumina and titania were over $0.5 \sim 7 \mu m$ and only 60% were below $1 \mu m$ and 90% were below $2.5 \mu m$. Therefore, Al_2TiO_5 powder produced from alkoxides had the narrower distribution in size than that produced from the commercial alumina and titania powders. The addition of mullite or Al_2O_3 powder to the prepared aluminium titanate inhibited the grain growth and this resulted in decrease of microcrack and increase in density.

Key words: Aluminum titanate, Metal alkoxide, Microcrack, Thermal expansion

1. 서 론

Aluminium titanate(Al_2TiO_5)는 약 $0.2 \times 10^6 K^{-1}$ 의 열팽창계수를 가지는 저열팽창 재료로서 우수한 열충격 저항성과 저열팽창성으로 인해 최근 그 응용에 많은 관심이 모아지고 있는 물질이다^{1,2}. aluminium titanate의 저열팽창성은 결정축에 따른 열팽창계수의 이방성(각 결정축에 따라 약 12, 20, $-2.6 \times 10^6 K^{-1}$)에 의한 미세균열이 그 원인으로 알려져 있으며³ 단결정의 평균

선열팽창계수($9.7 \times 10^{-6} K^{-1} = (\alpha_a + \alpha_b + \alpha_c)/3$)와 실질적인 다결정체의 측정된 열팽창계수($0.5 \sim 1.0 \times 10^{-6} K^{-1}$)의 큰 차이도 이를 통해 설명할 수 있다⁴.

소결후 냉각 과정에서 발생하는 이러한 미세균열은 Al_2TiO_5 의 저열팽창성과 함께 낮은 기계적 강도의 원인이 된다^{5,6}. 이러한 낮은 기계적 강도와 $700 \sim 1300 C$ 사이에서 Al_2O_3 와 TiO_2 로 분해되는 특성으로 인해 Al_2TiO_5 는 사용에 많은 제약이 따랐으나 최근에는 mullite, MgO, SiO_2 등의 첨가로 Al_2TiO_5 를 안정화시킴으로써 강도증진

및 분해 역제를 위한 연구가 이루어지고 있다¹⁴. 또한 Al_2TiO_5 는 용융 실리카 정도의 낮은 열팽창 계수를 이용하여 자동차 엔진의 exhaust port liner, missile nose cone, piston crown 등의 상업적 목적으로의 용융에 관심이 모아지고 있으며 실제로 유럽에서는 자동차의 exhaust port liner를 aluminum titanate로 대체하여 열효율을 증진시켰다고 보고되고 있다^{5,6,12}.

Al_2TiO_5 의 합성법에는 기존의 합성방법인 Al_2O_3 와 TiO_2 상용 분말을 기계적으로 혼합하여 1300°C 이상에서 열처리하는 방법이 있으나¹⁵ 이 방법은 미세구조 조절이 힘들고 혼합 불균일성에 따른 재현성에 문제가 있어 금속 알루미나를 사용한 졸겔법을 이용하여 우수한 미세구조를 나타낼 수 있는 Al_2TiO_5 분체, precursor 및 소결체를 합성하고자 하는 연구가 현재 활발히 진행되고 있다^{16, 19}.

이와 같은 여러 연구들을 종합하여 본 때 알루미나를 사용하여 미세하고 균질한 분말을 합성할 경우 소결시 Al_2TiO_5 입자의 급격한 입성장을 방지함으로써 냉각시 발생하는 미세균열들을 균일하게 제어함으로써 강도 증진 등 기계적 물성향상이 기대된다.

따라서, 본 연구에서는 Al_2TiO_5 의 저열팽창성 등의 우수한 열적 성질을 유지하면서 동시에 강도 등의 기계적 특성을 향상시키고자 하여 알루미나를 사용하여 보다 균질하고 미세한 Al_2TiO_5 분말을 합성하고자 하였으며 또한 mullite와 aluminum titanate의 구성 성분중의 하나인 Al_2O_3 를 각각 제 2상으로 첨가함으로써 이에 의한 입성장 억제, 미세구조 제어 등의 효과를 관찰하였다. 또한 일반적인 상용분말을 사용하여 제조한 Al_2TiO_5 분말과 비교하여 보았다.

2. 실험방법

2.1. Al_2O_3 - TiO_2 계 복합분말의 합성 및 소결체 제조

알루미나를 혼합 가수분해할 경우 발생하는 가수분해 속도 차이에 따른 불균질성을 줄이기 위해 Al 알루미나와 Ti 알루미나를 각각 별도로 가수분해한 후 생성된 두 가지의 투명졸을 혼합하는 방법을 택하였다. Al_2O_3 의 공급원으로는 aluminium sec-butoxide($Al(OC_4H_9)_3$, ASB)를 사용하고, TiO_2 의 공급원으로는 tetraethyl orthotitanate($Ti(OC_2H_5)_4$, TEOT)를 사용하였으며 하소후 최종 산화물인 Al_2O_3 와 TiO_2 의 몰비가 1:1이 되도록 제조하여 각각 가수분해하였다. 우선 aluminium sec-butoxide는 iso-propyl alcohol(IPA)를 용매로 사용하여 혼합한 후 HNO_3 (금속 알루미나 1몰당 0.4몰배)를 미리

첨가한 80°C의 2차 증류수(금속 알루미나 1몰당 100몰배)에 서서히 적하시키는 동시에 격렬히 교반시키며 가수분해를 실시하여 Al_2O_3 투명졸을 제조하였다²⁰. tetraethyl orthotitanate는 공기 중의 수분과도 쉽게 반응하므로 HNO_3 (금속 알루미나 1몰당 0.2몰배)를 에탄올에 미리 첨가한 후 혼합하고 이 용액에 20몰배의 2차 증류수를 적하하면서 격렬히 교반시켜 TiO_2 투명졸을 제조하였다²¹.

제조한 두 종류의 투명졸들을 동시에 혼합한 후 겔화가 일어나기 전까지 약 15분 동안 격렬히 교반하여 충분한 혼합이 일어나도록 하였다. 생성된 습윤젤은 겔 건조시 발생하는 응집을 최소로 하기 위하여 과잉의 2차 증류수가 거의 증발될 때까지 80°C에서 부분 건조한 후 다시 에탄올에 재분신시켜 80°C에서 건조하여 알루미늄 수화물과 티타늄 수화물이 혼합된 혼합 건조젤을 합성하였다. 이 건조젤을 1350°C에서 1시간 유지하여 Al_2TiO_5 를 합성하였고 분체를 위하여 alumina jar에서 고순도의 alumina ball을 사용하여 에탄올을 분산매로 하여 습식으로 볼밀(ball milling)한 후 건조하여 Al_2TiO_5 분말을 얻었다. 이 분말에 다시 mullite와 alumina 분말을 각각 0, 10, 20 wt% 씩 첨가하여 150 MPa의 압력으로 6×6×45 mm의 bar 형태로 냉간 정수압 성형한 후 공기 분위기 중에서 1500°C와 1600°C에서 2시간 소결하여 Al_2TiO_5 /mullite 및 Al_2TiO_5 / Al_2O_3 복합재료의 시편을 제조하였다.

또한 일반적인 제조방법으로 제조된 Al_2TiO_5 와의 물성 비교를 위해 상용의 Al_2O_3 (AES11)와 TiO_2 분말(Junsei Chemical Co. Ltd)을 1:1의 몰비로 혼합한 후 1350°C에서 1시간 유지하여 Al_2TiO_5 를 합성하고, 이후의 과정은 알루미나를 출발물질로 할 경우와 동일한 방법으로 하여 Al_2TiO_5 /mullite 및 Al_2TiO_5 / Al_2O_3 복합재료의 시편을 제조하였다.

2.2. 분석 및 관찰

건조젤의 온도별 상변화를 X선 회절 분석장치(D/MAX, Rigaku, Japan, 분석조건: $CuK\alpha$, Ni filter, 30 KVx1-mA, 8°/min, 2000 cps)를 통하여 관찰하였으며 또한 합성한 Al_2TiO_5 분말과 Al_2TiO_5 /mullite(alumina) 복합재료의 소결체의 상을 확인하였다.

시차열 분석기(NETZSCH STA 409 C, German)를 이용하여 결정화온도를 측정하였으며 공기 중에서 5°C/min의 속도로 승온시키며 상온에서 1400°C까지의 온도 범위에 걸쳐서 측정하였다.

합성한 Al_2TiO_5 분말의 입도분포를 입도분석기(LASER PARTICLE ANALYZER PAR-III, Otsuka Electronics,

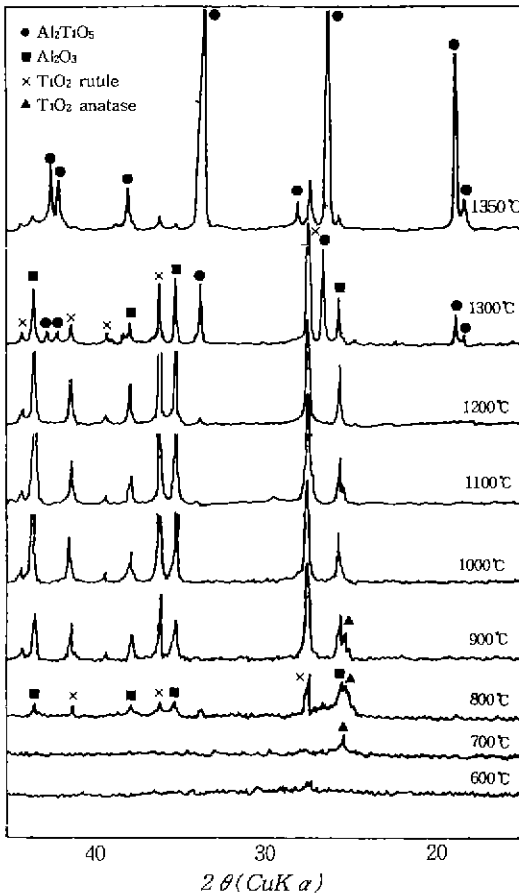


Fig. 1. XRD patterns of dried gel calcined at various temperatures for 1 h.

Japan)를 사용하였다.

소결체의 밀도는 시편의 질량을 부피로 나누어 측정하는 dimension법을 사용하였으며 Al_2TiO_5 /mullite(or alumina) 복합체의 상대밀도는 식(1)에 따라 구한 이론 밀도와외의 백분율로부터 산출하였다.

$$\frac{1}{\rho} = \frac{M_{Al}}{\rho_{Al}} + \frac{M_{mull}}{\rho_{mull}} \quad (1)$$

여기서, ρ 는 복합체의 밀도이고, M_{AT} 는 Al_2TiO_5 의 질량분율이며, M_{mull} 는 mullite(또는 alumina)의 질량분율, ρ_{Al} 는 Al_2TiO_5 의 이론밀도, ρ_{mull} 는 mullite(또는 alumina)의 이론 밀도이다.

주사 전자 현미경(S-2700, Hitachi, Japan)을 이용하여 합성한 Al_2TiO_5 분말과 Al_2TiO_5 /mullite(alumina) 복합재료의 소결체 표면의 미세구조를 관찰하였다.

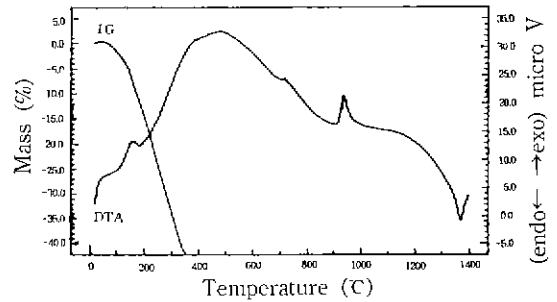


Fig. 2. DTA and TG curves of gel powder dried at 80°C (heating rate: 5°C/min).

3. 결과 및 고찰

3.1. 합성 Al_2TiO_5 분말의 특성

Al과 Ti의 금속 알콕사이드를 각각 밀도로 가수분해한 후 혼합 및 건조시켜 세조한 건조젤을 각 온도별로 생성되는 결정상을 확인하기 위하여 600°C에서 1350°C까지의 온도범위에서 1시간씩 가열하여 XRD에 의한 상분석을 하였다. 그 결과 Fig. 1에서 나타낸 바와 같이 700°C에서부터 anatase상이 나타나기 시작하였으며 800°C에서는 alumina와 rutile상이 나타나기 시작하여 alumina, rutile 및 anatase상이 공존하다가 1000°C에 이르러서는 alumina와 rutile상만이 존재하는 것을 확인할 수 있었다. Al_2TiO_5 상은 1300°C가 되어서야 나타나기 시작함을 확인하였다. 1350°C에서 1시간 동안 유지한 젤은 대부분이 Al_2TiO_5 로 합성된 것을 확인할 수 있었다²⁾. 그러나 미량의 미반응상태의 Al_2O_3 와 TiO_2 는 보다 높은 온도에서 소결할 때 반응소결 부분으로 작용시킴으로써 소결의 효과를 높일 것으로 추정된다.

DTA 분석 결과는 Fig. 2에서 나타낸 바와 같이 725°C와 925°C 부근에서 존재하는 발열피크는 XRD 분석 결과로 미루어 보아 각각 anatase와 alumina의 결정화 온도로 판단되며 rutile의 결정화 peak는 alumina의 결정화 peak와 중첩되어 나타난 것으로 판단된다. 또한 alumina의 결정화 온도가 925°C로 상당히 낮게 나타난 것은 rutile상이 결정화를 도왔기 때문으로 생각할 수 있으나 이를 확인하기 위해서는 더욱 연구가 필요하다고 생각된다¹⁾ 또한 1350°C 부근에서 나타난 흡열피크는 Al_2TiO_5 생성에 의해 나타나는 피크임을 알 수 있다. TG 분석 결과 최대 측정범위인 40%를 벗어나는 큰 중량 감소가 일어난 것을 Fig. 2에서 알 수 있으며 이는 젤을 건조할 때 비교적 낮은 온도인 80°C에서 건조가 이루어져 상당히 많은 결합수가 그대로 남아 있었기 때문으로

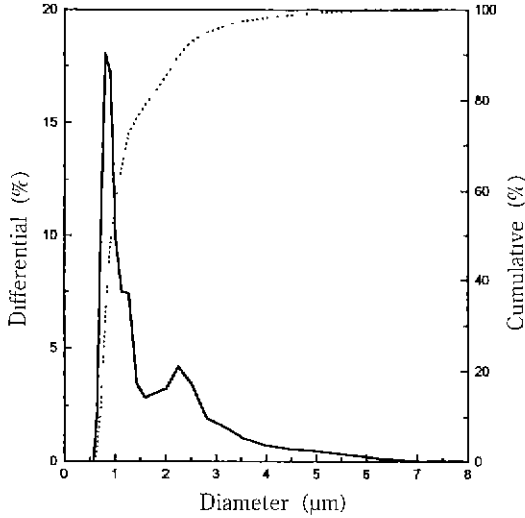


Fig. 3. Particle size distribution of Al_2TiO_5 powder prepared from the commercial Al_2O_3 and TiO_2 mixed powder.

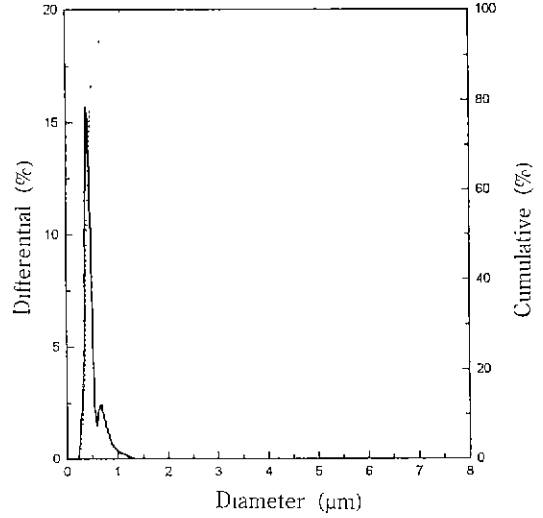


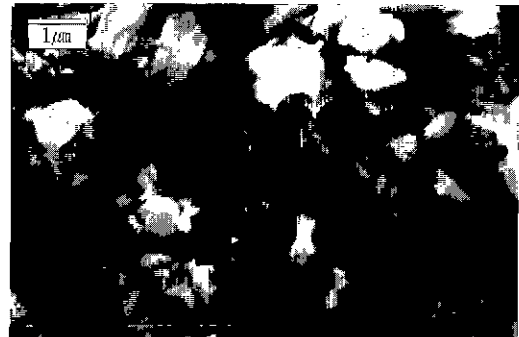
Fig. 4. Particle size distribution of Al_2TiO_5 powder prepared from metal alkoxides.

생각된다 이것은 저자 등이 금속 알콕사이드 $Al(OC_2H_5)_3$ 와 $Ti(OC_2H_5)_4$ 로 부터 Al_2O_3 - TiO_2 계 nanocomposite 분체를 합성하는 연구를 수행할 경우에 얻은 TG 분석결과와 거의 일치하고 있다²².

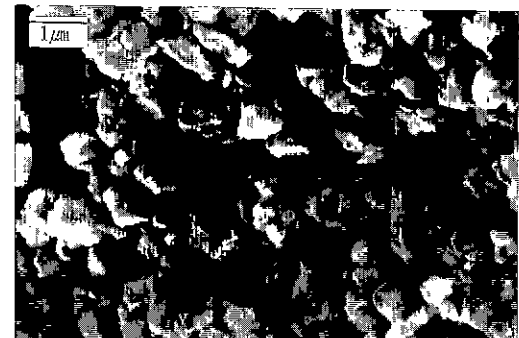
상용의 Al_2O_3 와 TiO_2 의 혼합분말을 열처리하여 제조한 Al_2TiO_5 분말과 졸겔법으로 제조한 분말의 입도 분포를 Fig. 3과 Fig. 4에 각각 나타내었다. 상용의 혼합분말로부터 제조된 Al_2TiO_5 분말의 경우 0.5 μm 에서부터 7 μm 에 이르는 매우 넓은 입도 분포를 가지는 것에 비해 졸겔법으로 제조한 Al_2TiO_5 분말은 대부분이 1.5 μm 이하의 입경을 가지는 매우 좁은 입도분포를 가지는 것을 확인할 수 있다. 입자크기에 있어서도 졸겔법으로 제조한 Al_2TiO_5 분말의 경우 90% 이상이 1 μm 이하의 입경을 가지는 데 비하여 혼합분말로부터 제조한 Al_2TiO_5 분말은 입경이 1 μm 이하인 입자는 60%이며, 2.5 μm 이하는 90%로서 졸겔법으로 제조한 Al_2TiO_5 분말이 상용의 Al_2O_3 와 TiO_2 의 혼합분말로부터 제조한 Al_2TiO_5 분말보다 훨씬 좁은 입도분포와 미세한 입자크기를 가짐을 확인할 수 있었다. 이러한 사실은 Fig. 5에 나타난 분말에 대한 SEM 사진의 관찰 결과로부터도 확인할 수 있었다.

3.2. Al_2O_3 - TiO_2 계 복합재료의 소결체의 특성

Table 1에 본 연구에서 사용한 시편의 명칭에 따른 출발물질과 조성 그리고 첨가제인 alumina(Al_2O_3)와 mullite($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$)의 함량을 나타내었다.



(a)



(b)

Fig. 5. SEM photographs of Al_2TiO_5 powder prepared from (a) Al_2O_3 and TiO_2 mixed powder and (b) metal alkoxide.

Table 1. Sample Notation Used in Tris Research

Sample name	Starting material	Phase	Additive contents
AT	Al ₂ O ₃ +TiO ₂ mixed powder	Al ₂ TiO ₅ , 3Al ₂ O ₃ · 3SiO ₂ (mullite)	no mullite
ATM10			mullite 10 wt%
ATM20			mullite 20 wt%
SGATM0	Aluminium sec butoxide, Tetra- ethyl ortho-titanate		no mullite
SGATM10			mullite 10 wt%
SGATM20			mullite 20 wt%
ATA	Al ₂ O ₃ +TiO ₂ mixed powder	Al ₂ TiO ₅ , Al ₂ O ₃	no alumina
ATA10			alumina 10 wt%
ATA20			alumina 20 wt%
SGAT	Aluminium sec butoxide, Tetra- ethyl ortho-titanate		no alumina
SGATA10			alumina 10 wt%
SGATA20			alumina 20 wt%

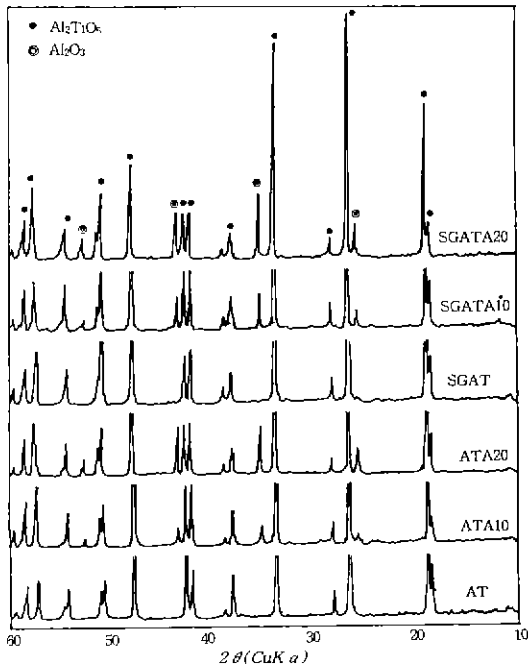


Fig. 6. XRD patterns of ATA series and SGATA series sintered at 1500°C for 2 h.

3.2.1. 상분석

Fig. 6과 Fig. 7에 Al₂TiO₅/alumina와 Al₂TiO₅/mullite 복합체 각각에 대한 소결시편의 XRD 분석 결과볼 나타내었다. 모든 시편에 Al₂TiO₅상이 존재하는 것을 확인하였으며 1350°C에서 합성한 분말의 XRD(Fig. 1)에서 미량으로 존재하던 Al₂O₃와 TiO₂의 XRD peak도 모두

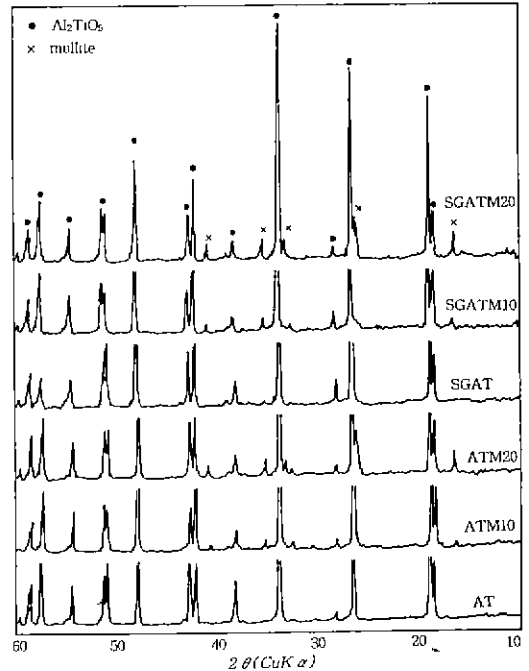


Fig. 7. XRD patterns of ATM series and SGATM series sintered at 1600°C for 2 h.

사라진 것으로 보아 분말내에 존재하던 일부 미반응물들이 소결과정에서 모두 Al₂TiO₅로 반응하였음을 알 수 있다. 또한 첨가제로 첨가된 alumina와 mullite는 안정한 제 2 상으로 존재하는 것이 확인되었으며 이러한 결과를 바탕으로 alumina와 mullite는 각각 Al₂TiO₅ 입자 성장을 억제하는 이차상으로 작용할 것이라는 예상을 할 수

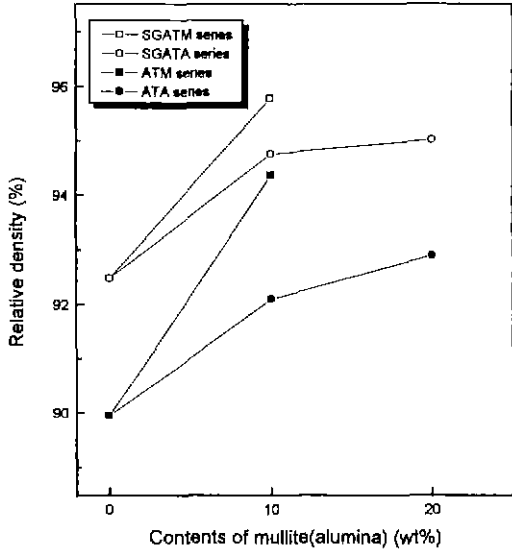


Fig. 8. Relative density of Al₂TiO₅ sintered at 1500°C for 2 h.

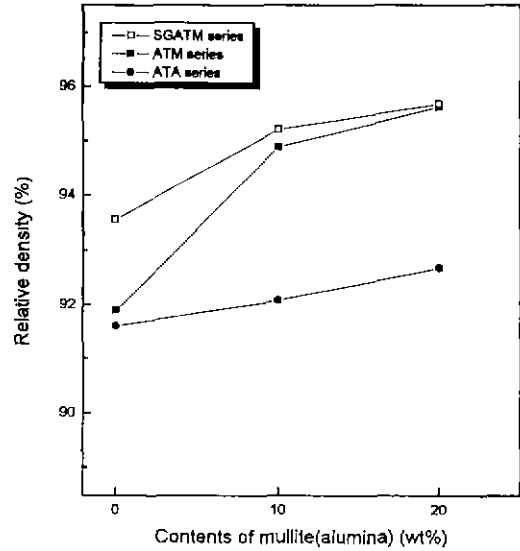


Fig. 9. Relative density of Al₂TiO₅ sintered at 1600°C for 2 h.

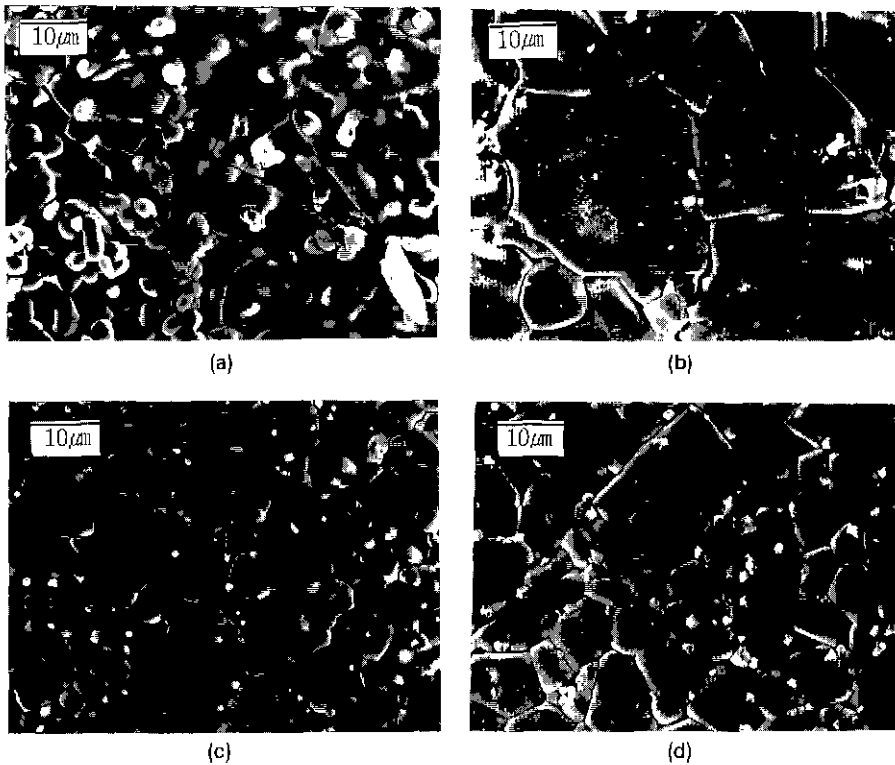


Fig. 10. SEM photographs of as-sintered surfaces of Al₂TiO₅ specimens:
 (a) prepared from Al₂O₃-TiO₂ mixed powder and sintered at 1500°C for 2 h
 (b) prepared from Al₂O₃-TiO₂ mixed powder and sintered at 1600°C for 2 h
 (c) prepared by sol-gel method and sintered at 1500°C for 2 h.
 (d) prepared by sol-gel method and sintered at 1600°C for 2 h.

있다.

3.2.2. 상대밀도

1500°C와 1600°C에서 소결한 시편들의 상대밀도값을 각각 Fig. 8과 Fig. 9에 나타내었다. 1500°C와 1600°C에서 소결한 시편 모두 제 2상인 alumina와 mullite의 양이 증가할수록 밀도도 증가하는 경향을 보였으며 이것은 XRD 결과에서도 나타난 바와 같이 alumina와 mullite가 Al_2TiO_5 의 입자사이에 제 2상으로 존재하여 Al_2TiO_5 입자의 성장을 억제하는 역할을 하여 치밀화를 도왔기 때문으로 판단된다.

또한 1500°C 소결체와 1600°C 소결체 모두 Al_2TiO_5 /mullite 복합체의 밀도가 Al_2TiO_5 /alumina 복합체의 밀도보다 높은 값을 가지는 것을 확인할 수 있으며 이러한 결과로부터 mullite가 alumina보다 치밀화에 효과적임을 알 수 있었다. 그러나 mullite가 alumina에 비하여 Al_2TiO_5 의 치밀화에 더욱 효과적인 원인에 대해서는 아직 설명할 수 없으나 mullite의 열팽창계수가 알루미늄에 비하여 더욱 작아서 Al_2TiO_5 의 열팽창계수에 가까운 배

분인 것으로 추정된다.

그러나 제 2상의 첨가량이 증가함에 따라서 1500°C와 1600°C에 대한 시편의 밀도값에서 오히려 고온소결 시편이 작은 밀도값을 보여주고 있는 것은 밀도측정시에 시편의 dimension으로 부터 밀도를 측정하였기 때문에 큰 오차가 개입된 것과 아직 확실하지는 않으나 소결후의 냉각시에 고온소결을 한 시편이 보다 큰 냉각온도 차이로 인한 균열발생 때문으로 추정된다.

3.2.3. 소결체 미세구조

제 2상을 첨가하지 않은 순수한 Al_2TiO_5 분말 소결체의 표면을 Fig. 10에 나타내었다. 상용의 Al_2O_3 와 TiO_2 혼합분말로부터 제조한 Al_2TiO_5 소결체(AT)의 경우에는 입자가 크고 입계에 매우 큰 미세균열들이 존재하는 것이 보이는 반면에 sol-gel법으로 제조한 분말의 소결체(SGAT)는 입자가 작으면서 균일하게 분포하고 있으며 미세균열의 크기가 보다 작은 것을 확인할 수 있었다. 이는 본 연구에서 의도했던 바와같이 sol-gel법으로 균일하고 미세한 Al_2TiO_5 분말을 제조하게 되면, 소결체의

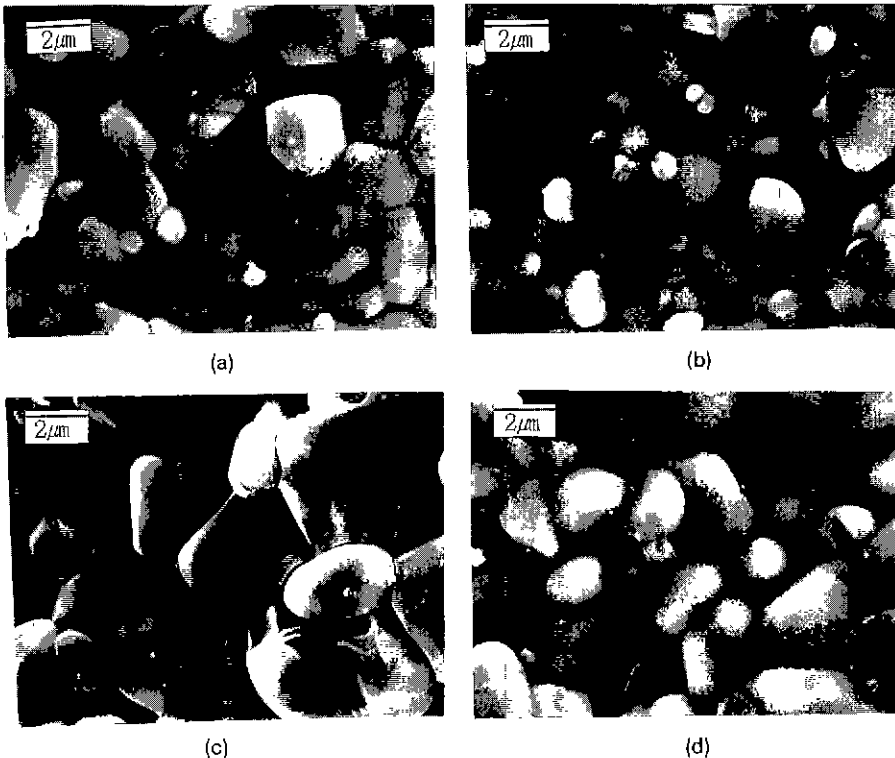


Fig. 11. SEM photographs of surfaces of the specimens:

(a) SGATA10, (b) SGATA20 sintered at 1500°C for 2 h, (c) SGATA10, (d) SGATA20 sintered at 1600°C for 2 h.

입자 크기를 작게 하고 균일하게 조절할 수 있으며 또한 미세균열을 보다 작게 조절할 수 있을 것이라고 예상한 것과 일치하는 결과를 얻었다. Fig. 11은 alumina와 mullite를 제 2상으로 첨가하고 1500°C와 1600°C에서 각각 소결한 소결체의 표면 사진이며 모두 첨가량이 증가하면서 Al_2TiO_5 의 입성장을 억제함으로써 입자크기도 감소하는 것을 알 수 있다. 또한 Al_2TiO_5 /mullite 복합체 중의 Al_2TiO_5 입자크기가 Al_2TiO_5 /alumina 복합체 중의 입자크기보다 큰 이유는 전자의 소결온도가 1600°C이고 후자의 소결온도가 1500°C로서 전자의 경우가 더 높아서 입성장이 상대적으로 많이 일어났기 때문인 것으로 생각된다.

4. 결 론

Aluminium sec-butoxide($Al(OC_4H_9)_3$)와 tetraethyl orthotitanate($Ti(OC_2H_5)_4$)를 출발물질로 하는 sol-gel 법에 의하여 Al_2TiO_5 분말을 제조하고 그 불성을 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. Al과 Ti의 금속 알루미늄사이드를 각각 별도로 가수분해하여 각각의 clear sol을 제조한 후에 동시에 혼합하여 제조한 겔을 1350°C에서 1시간 가열하여서 얻은 분말은 90% 이상이 1 μm 이하의 입성을 가지는 반면에 상용의 Al_2O_3 와 TiO_2 분말로 부터 일반적인 제조법에 의하여 동일한 온도인 1350°C에서 1시간 동안 가열하여 제조한 Al_2TiO_5 분말은 0.5~7 μm 의 넓은 분포를 나타내었다. 따라서 sol-gel 법에 의하여 제조한 Al_2TiO_5 분말이 훨씬 더 미세하고 좁은 입도분포를 나타내었다.

2. 제 2상으로 첨가한 mullite와 Al_2O_3 는 aluminium titanate 소결체 내에서 각각 안정한 상으로 존재하여 aluminium titanate의 입성장을 억제하는 역할을 하였으며 그 결과 미세균열이 감소하여 밀도가 증가하였다.

감사의 글

본 연구는 1995년도 교육부 신소재분야 연구지원(Ministry of Education Research Fund for Advanced Materials in 1995)에 의해 이루어 졌으며 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. Materials Science and technology: Structure and properties of ceramics, edited by R.W. Cahn, P. Haasen and E.J. Kramer, vol 11, pp. 528-530, 1994.
2. Hiroyuki Morishima, Zenzi Kato, Keizo Uematsu, Katsukazu Saito, Toyohiko Yano and Noboru Ootsuka, "Synthesis of aluminium titanate-mullite composites having high thermal shock resistance," *J. Mat. Sci. letters*, **6**, 389-390 (1987)
3. Yutaka Ohya, Kenya Hamano, and Zenbe-e Nakagawa, "Gran boundary microcracking due to thermal expansion anisotropy in aluminium titanate ceramics," *J. Am Ceram. Soc.*, **70**(8), c184-c186 (1987).
4. Fred J. Parker and Roy W. Rice, "Correlation between grain size and thermal expansion for aluminium titanate materials," *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**(12), 2364-2366 (1989).
5. H.A.J. Thomas, and R. Stevens, "Aluminium titanate-A literature review, Part 1: Microcracking phenomena," *Br Ceram. Trans*, **88**, 144-151 (1989).
6. H.A.J. Thomas, and R. Stevens, "Aluminium titanate-A literature review, Part 2: Engineering properties and thermal stabilities," *Br. Ceram. Trans*, **88**, 184-190 (1989).
7. Masayuki Ishitsuka, Tsugio Sato, Tadashi Endo and Masahiko Shimada, "Synthesis and thermal stability of aluminium titanate solid solution," *J Am. Ceram Soc.*, **70**(2), 69-71 (1987).
8. Toyohiko Yano, Nobuaki Nagar, Masakatsu Kiyohara, Katsuchi Saito and Nozomu Otsuka, "Thermal and mechanical properties of aluminium titanate-mullite composites: Part 1 Effects of composition," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94**(9), 970-976 (1986)
9. Toyohiko Yano, Masakatsu Kiyohara, and Nozomu Otsuka, "Thermal and mechanical properties of aluminium titanate-mullite composites: Part 2 Thermal shock resistance," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94**(11), 1190-1192 (1986)
10. Yutaka Ohya, Kenya Hamano, and Zenbe-e Nakagawa, "Effects of some additives on microstructure and bending strength of aluminium titanate ceramics," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94**(7), 665-670 (1986).
11. Duan-Fen Qian, Yutaka Ohya, Kenya Hamano and Zenbe-e Nakagawa, "Effects of excess alumina on microstructure of aluminium titanate ceramics prepared from mixture of alumina with titania," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **93**(6), 315-321 (1985).
12. C. Razim and C. Kaniut, "Ceramics in the automobile industry," in *Designing with structural ceramics*, edited by R.W. Davidge and M.H. Van De Voorde, Elsevier Applied Science, pp. 273-295, 1990.
13. Bernhard Freudenberg and Alain Mocellin, "Aluminium titanate formation by solid-state reaction of fine Al_2O_3 and TiO_2 powders," *J. Am Ceram. Soc.*, **70**(1), 33-38 (1987).

14. Bernhard Freudenberg and Alan Mocellin, "Aluminum titanate formation by solid-state reaction of coarse Al_2O_3 and TiO_2 powders," *J. Am Ceram. Soc.*, **71** (1), 22-28 (1988).
15. Kenya Hamano, Yutaka Ohya, and Zenbe-e Nakagawa, "Microstructure and Mechanical strength of aluminum titanate ceramic prepared from mixture of alumina and titania." *Yogyo-Kyokai-Shi*, **91**(2), 94-101 (1983)
16. P.A. Brugger and A. Mocellin, "Preparation of composite Al_2O_3 - TiO_2 particles from organometallic precursors and transformations during heating," *J Mat. Sci.*, **21**, 4431-4435 (1986).
17. Hiromichi Okamura, Eric A. Barringer and H. Kent Bowen, "Preparation and sintering of monosized Al_2O_3 - TiO_2 composite powder," *J. Am Ceram Soc.*, **69** (2), c22-c24 (1986).
18. Hiromichi Okamura, Eric A. Barringer and H. Kent Bowen, "Preparation and sintering of narrow-sized Al_2O_3 - TiO_2 composite powders," *J. Mat Sci.*, **24**, 1867-1880 (1989).
19. W.F. Kladnig and H. Mayer, "Aluminium titanate formation by the gas-phase hydrolysis method," *J Mat. Sci.*, **25**, 1973-1977 (1990).
20. Bulent E Yoldas, "Alumina sol preparation from alkoxides," *Ceramic Bulletin*, **54**(3), 289-290 (1975).
21. Bulent E Yoldas, "Hydrolysis of titanium alkoxide and effects of hydrolytic polycondensation parameters," *J Mat Sci.*, **21**, 1087-1092 (1986).
22. 이홍림, 이호순, " Al_2O_3 - TiO_2 계 Nanocomposite 분체의 합성에 관한 연구," *요업학회지*, **30**(2), 115-122 (1993).