

## 균일입도 초미분 $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$ 생성에 미치는 요소 농도의 영향

權泳植<sup>1</sup> · 金東秀\*

<sup>1</sup>수원전문대학 환경공업과  
이화여자대학교 환경공학과  
(1997. 11. 28 접수)

### Effect of Urea Concentration on Preparation of Monodispersed Colloidal Particles of Yttrium Hydroxycarbonate by Homogeneous Precipitation

Young-Shik Kwon<sup>1</sup> and Dong-Su Kim\*

<sup>1</sup>Department of Environmental Engineering, Suwon Industrial College, KyongKi-Do 445-742, Korea  
Department of Environmental Engineering, Ewha Womans University, Seoul 120-750, Korea  
(Received November 28, 1997)

**요 약.** 균일 침전법에서 침전제인 요소의 초기 농도가, 생성되는 균일 입도 초미분  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전의 형상, 입도 및 침전 속도 등에 미치는 영향을 조사하였다. 요소의 초기 농도가 높을수록 얻어지는 균일 입도 초미분의 평균 입도는 작아지나, 일정농도(본 실험조건의 경우 4.0~7.0 M 사이) 이상으로 높아지면 급격한 침전 반응으로 인해 불규칙한 형상의 응집된 큰 침전이 얻어졌다. 요소의 초기 농도가 증가함에 따라 침전 반응 속도는 증가하나, 일정 농도(본 실험 조건의 경우, 약 4.0 M) 이상이 되면, 요소 농도 증가에 따른 반응 속도의 증가가 더 이상 없는 포화 상태가 되었다. 요소의 과잉 사용은 반응후 남은 미분해 요소의 증가로 인해 수질 오염 등의 환경 문제를 유발시키므로, 얻고자 하는 침전 크기 및 반응속도 등을 고려하여 적절한 요소의 초기 농도를 결정하는 것은 공업적 및 환경적 측면에서 중요하다고 판단된다.

**ABSTRACT.** Homogeneous precipitation of  $Y^{3+}$  with urea has been studied in order to investigate the effect of urea concentration on the preparation of monodispersed colloidal "Yttrium Hydroxycarbonate ( $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$ )". As the initial concentration of urea increased, the mean size of colloidal precipitates decreased, and the rate of precipitation of  $Y^{3+}$  increased. When the initial concentration of urea was higher than 4.0~7.0 M, precipitates obtained were no more monodispersed colloidal particles, but coagulated big particles; and, although the initial concentration of urea increased over 4.0 M, the rate of precipitation did not increase. It is important to decide the proper initial concentration of urea, because excessive urea can cause the environmental problems such as water pollution.

### 서 론

희토류 산화물은 높은 용점과 원자 구조적 특이성으로 인해 각종 세라믹 재료<sup>1,2</sup>로의 이용과 함께 형광체 및 촉매 등으로의 응용도 확대되고 있다.<sup>3-5</sup> 특히 산화이트륨( $Y_2O_3$ )은 기능성 세라믹 재료의 첨가제,<sup>4,6</sup> 산화물 분산강화 합금(ODS alloy)용 분산제,<sup>7,8</sup> TV 브라운관 및 램프용 형광체,<sup>9</sup> 적외선 투과용 투명재료<sup>10</sup> 등에 폭넓게 사용되고 있어 그 중요성이 계속 커지고

있다. 그런데 많은 응용 분야중 특히 세라믹 재료 및 형광체 등에 사용되는 희토류 산화물은 균일 입도와 초미분의 성질이 요구되는데, 이는 최종 제품의 성질에 큰 영향을 미치는 소결 과정의 최적화 등이 그 이유이다.<sup>11-15</sup> 따라서 각종 희토류 산화물의 균일 입도 초미분의 제조 방법을 확립하고 이를 공업화하는 것은 연구 검토의 가치가 크다고 보겠다.

균일 입도 초미분의 희토류 산화물을 만들 수 있

는 여러 방법중 균일 침전법은 공업적으로 유리한 방법으로 널리 연구되고 있다.<sup>16,17</sup> 즉, 입도 조절이 가능하고 공정이 간단한 균일 침전법을 이용하여 균일 입도 초미분의 회토류 화합물(예:  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$ )을 제조한 후, 이 화합물을 하소하여 균일 입도 초미분의 회토류 산화물(예:  $Y_2O_3$ )을 제조하는 것이다.<sup>18,19</sup> 이러한 이유로 Matijevic,<sup>16,18</sup> Akinc<sup>12,14,19</sup> 등은 다양한 회토류 원소를 대상으로 하여 요소(urca)의 분해를 이용한 균일 침전법을 연구하였다. 그 결과 생성된 침전의 조성, 등전점(IEP) 등<sup>18</sup>과, 회토류 원소 및 침전제의 농도, 침가 음이온의 종류 및 반응 시간 등이 생성되는 침전의 형상 및 입도에 미치는 영향 등<sup>19</sup>이 부분적으로 밝혀졌으나 이들 영향들에 대한 체계적이고, 정량적인 해석이 여전히 필요한 실정이다.

특히 침전제로 사용하는 요소의 경우 다량 사용시 수질 오염 등 환경 문제를 일으킬 수 있으므로 요소 농도가 침전 반응에 미치는 영향에 대한 정량적인 해석을 통해 침전 반응을 위한 요소의 적성 사용량을 조사하는 것은 공업적 및 환경적인 측면에서도 대단히 중요하다고 할 수 있다.

이에 본 연구에서는 응용 범위가 넓은 이트륨을 대상으로, 이전 연구<sup>20</sup>에 이어, 요소를 사용한 균일 침전법에서, 침전제인 요소의 농도가  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전의 생성에 미치는 영향을 정량적으로 조사하였다. 이를 위해 요소 농도의 변화가 생성되는 침전 입자의 형상 및 크기에 미치는 영향과 함께, 반응 속도 및 반응 완료 시간 등에 미치는 영향을 자세히 살펴보았다.

**실험 방법**

**실험 재료 및 장비.** 본 연구에서 사용한 실험 재료들은 시약급 질산이트륨( $Y(NO_3)_3$ ; Strem Chemicals, 미국), 시약급 요소( $(NH_2)_2CO$ ) 및 pH 조절용 시약급 질산과 암모니아수 이다. 이트륨 및 요소의 저장 용액은 다음과 같이 준비하였다. 먼저 이트륨 저장 용액의 제조를 위해서는 증류수에 질산이트륨을 녹여 농도가 약 4.5~5.0 M 범위의  $Y(NO_3)_3$ 의 저장 용액을 만든 후, 이트륨의 정확한 농도는 EDTA 적정법으로 정량(실험방법중 이트륨 농도의 정량부분 참조)하여 구하였으며, 필요에 따라 이 용액을 희

석하여 사용하였다. 요소는 120.12 g 및 300.3 g을 정확히 취해 각각 증류수에 용해시킨 후 이를 1000 mL로 희석하여 2.0 M 및 5.0 M의 저장 용액을 만들어 사용하였다. 한편 요소는 낮은 온도의 수용액 중에서도 미량이나마 분해(5°C, 1주일 보관시 초기량의 0.01%이하 분해)<sup>21</sup>하므로 요소 농도의 변화를 막기 위해 저장 용액은 냉장고(5°C이하)에 보관하며 제조 후 일주일 이내에 사용하였다. 한편 5.0 M 이상의 요소 용액은 필요한 경우 즉석에서 제조하여 사용하였다.

침전 반응을 위한 반응 용기로는 직경 20 mm × 높이 160 mm × 두께 1 mm의 시험관을 사용하였으며, 반응 온도를 ±1°C 이내로 유지하기 위해서는 온도 조절이 자동으로 되는 항온조를 사용하였다. 이러한 실험장치의 전체적인 모습을 Fig. 1에 나타내었다.

**침전 제조.** 침전 즉,  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  제조를 위해서는 먼저 저장 용액으로부터 원하는 양의 이트륨 및 요소 용액과 증류수를 취해 혼합 용액을 만든 다음, 용액 중에 존재할 수 있는 부유 입자의 제거를 위해 여과지(#41, Whatman)를 통과시킨 후 25 mL씩 시험관에 주입하여 고온의 항온조에 담구었다. 이 경우 제조된 혼합 용액의 pH는 진한 이트륨( $Y^{3+}$ ) 농도에서도  $Y(OH)_3$ 가 생성되지 않는 pH 5.5~6(Fig. 2 참조)<sup>22</sup> 사이가 되어 초기에 이트륨 수산화물이 생성되는 것을 막을 수 있었다. 한편 요소 농도 외의 다른 실험조건들의 경우, 이전 연구결과<sup>20</sup>에 근거하여, 이트륨 초기 농도는 0.02 M, 반응 온도는 요소 분해 반응이 활발한 95°C로 하였다. 한편 Fig. 3에서 보는 바와 같이 시험관내의 반응 용액은 항온조에 주입 후 약 2분만에 반응 온도인 95°C에 도달하므로 이

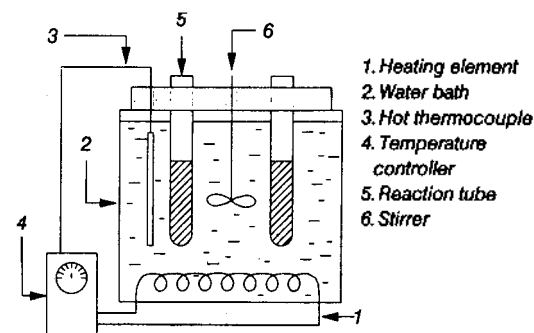


Fig. 1. A schematic diagram of the experimental apparatus for the homogeneous precipitation.

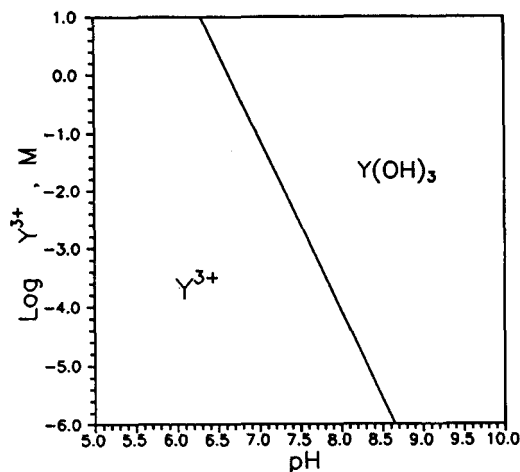


Fig. 2. Stability of yttrium hydroxide at 25 °C.<sup>22</sup>

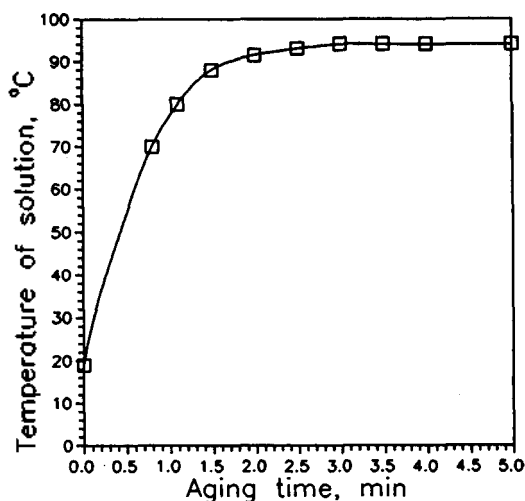


Fig. 3. The time required for solution to reach the preset temperature.

시간을 총 반응 시간에서 감하였다. 반응이 완료되면 원심분리기를 이용해 침전물을 회수한 다음 에탄올에 3회 세척후, 100 °C로 유지된 오븐에서 하룻밤 말려 건조 분말로 만들었다. 이러한 조작 과정을 Fig. 4에 나타내었다.

**형상 및 입도 분석.** 침전 즉,  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$ 의 형상 및 크기를 살펴보기 위해서는 투과전자현미경 (JEM-200CX, JEOL) 및 주사전자현미경 (JSM-35, JEOL)을 사용하였다. 이를 위한 시편 준비는 다음과 같이 하였다. 투과전자현미경을 위해서는 먼저 침전의 분말 시료를 에탄올에 잘 분산시킨 후, 이 용액을

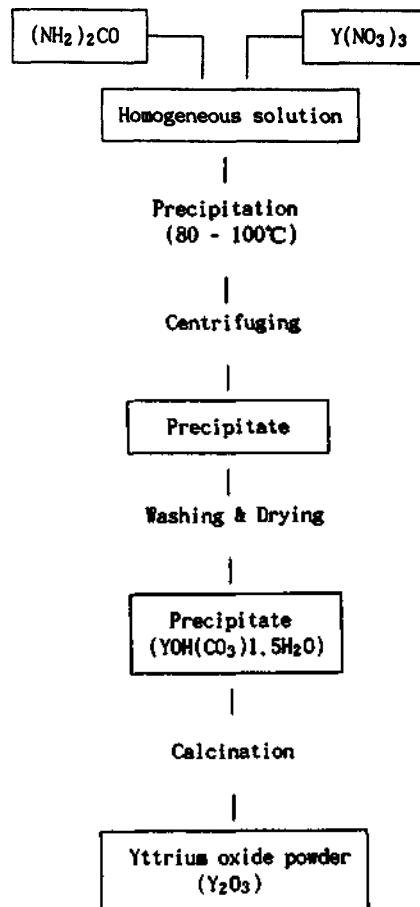


Fig. 4. Preparation of powder by homogeneous precipitation.

합성 수지(ethylenedichloride)를 입힌 구리 그리드(grid) 위에 2~3방울 떨어뜨려 충분히 묻혔다. 이를 진공 중에서 말려 에탄올을 완전히 제거하고 전도성을 향상시키기 위해 탄소 막을 입힌 후 관찰용 시편으로 사용하였다. 한편, 주사전자현미경 분석을 위해서는 역시 침전의 분말 시료를 에탄올에 잘 분산시킨 후, 이 용액을 표면을 깨끗이 연마한 시편지지대(specimen holder)위에 충분히 묻혔다. 이를 건조 오븐 중에서 말려 에탄올을 완전히 제거한 후 전도성이 좋은 금막(金膜)을 입혀 관찰용 시편으로 사용하였다. 한편 생성된 침전의 입도 분포를 조사하기 위해서는 입도 분석기(Mastersizer, MALVERN)를 사용하였으며, 침전의 제타전위의 측정이 필요한 경우에는 제타전위 측정장치(Autosizer-III, MALVERN)

를 사용하였다.

**이트륨 농도의 정량.** 반응 시간에 따른 이트륨의 반응량(즉, 침전량)은 각 반응 시간에서의 반응 용액 중의 미반응 이트륨 농도를 정량한 후, 초기 농도로부터 감하여 얻었다. 이를 위해 반응 용액중의 미반응 이트륨 농도는 다음과 같이 정량 하였다. 먼저 반응에 의해 생성된 침전 즉,  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$ 을 반응 용액으로부터 분리하고자 응집제인 PAA(polyacrylamide)가 0.5 g/L의 비율로 녹아있는 용액을 반응 용액과 부피비로 1:1로 섞은 다음 자력교반기로 5분 동안 교반한 후 원심분리기를 이용하여 침전물과 용액을 분리하였다. 이렇게 하여 분리된 반응 용액은 침전물이 없는 맑은 용액이 되었으며, 이 용액을 적당 비율로 희석한 후 이를 0.001 M의 EDTA 용액으로 적정하여 반응 용액중의 이트륨 농도를 결정하였다. 이때 사용한 지시약은 크실렌 오렌지(xylene orange)이며, 적정중 용액의 pH를 4~5에서 일정하게 유지하기 위해서는 초산 나트륨 및 초산을 1:1의 당량비로 섞은 완충 용액을 사용하였다.

### 결과 및 고찰

**입도 및 형상 변화.** 요소의 초기 농도가 생성되는  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전의 크기 및 형상에 미치는 영향을 조사하기 위해, 요소 농도를 0.04 M~7.0 M사이에서 체계적으로 달리하며  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$ 을 얻은 후, 입도 및 형상의 변화를 조사하였다. 그 결과 Photo. 1 및 Fig. 5에 나타낸 바와 같이, 균일 침전법에서는 요소의 초기 농도가 높을 수록 얻어지는  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전의 크기는 작아짐을 알았다. 즉, Fig. 5에서 알 수 있는 바와 같이 요소의 초기 농도가 0.04 M인 경우에는 평균 입도가 0.22  $\mu m$ 인 구형의 균일 입도 초미분 형상의 침전을 얻는 반면, 초기 요소 농도가 백배 증가한 4.0 M인 경우에는 평균 입도가 0.1  $\mu m$ 인 구형의 균일 입도 초미분을 얻었다. 이러한 입자 크기의 변화는 요소의 분해에 의해 공급되는 음이온( $CO_3^{2-}$ ,  $OH^-$ )<sup>18,23</sup>의 양과 관계 있는 것으로 판단된다. 즉, 요소의 초기 농도가 높아짐에 따라 요소 분해에 의해 용액 중으로 단위 시간당 공급되는 음이온( $CO_3^{2-}$ ,  $OH^-$ )의 양도 많아지며, 따라서 음이온 농도의 증가 속도가 빨라져, 침전핵 생성 전에 보다 높은 과포화도에 도달할 수 있다. 이렇게

되면 핵생성시 높은 과포화도로 인해 보다 많은 수의 핵이 생성되고, 이로 인해 용액중의 이트륨 양이 한정된 경우 개개의 핵이 성장할 수 있는 크기는 작아지므로 보다 미세한 침전이 얻어지는 것으로 판단된다.<sup>24,25</sup> 한편 이전의 연구 결과<sup>20</sup>에 의하면 이트륨의 초기 농도가 낮을 수록 역시 보다 미세한  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전을 얻을 수 있는 것으로 조사된 바 있다. 따라서 대량 생산이 요구되는 공업적 측면을 고려하면, 균일 침전법에서, 보다 미세한  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전을 얻기 위해서는 초기 이트륨 농도를 낮추기 보다는 초기 요소 농도를 증가시키는 것이 유리함을 알 수 있다.

한편 Photo. 1의 g)에서 보는 바와 같이 요소의 초기 농도가 아주 높아 약 7.0 M의 경우에는 미세한 입자들이 그물처럼 응집된 불규칙한 형상의 큰 입자가 얻어지고 있는데, 이는 요소 농도가 아주 높은 경우에는 요소의 분해에 의해 용액 중에 공급되는 음이온( $CO_3^{2-}$ ,  $OH^-$ )의 양이 과다하여 침전 반응이 급격하게 이루어지기 때문인 것으로 판단된다. 즉, Fig. 6에서 보는바와 같이 요소의 초기 농도가 약 5.0 M 이상이 되면 균일 침전 반응은 반응 시작 후 10분 이내에 급격히 완료되며, 이 경우 개개의 침전물 입자들은 급격하게 성장하며 바로 옆의 입자들과 응집되어 갈 것으로 판단된다. 이는 마치  $Y^{3+}$ 이온이 함유된 용액에  $CO_3^{2-}$  및  $OH^-$ 가 다량 함유된 용액을 급격히 붓는 경우 불규칙한 형상의 침전이 얻어지는 경우와 비슷하다고 하겠다.

**반응 속도 및 pH의 변화.** 요소를 사용한 균일 침전법에서  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전의 생성은 요소의 분해에 의해 발생하는 음이온( $CO_3^{2-}$  및  $OH^-$ )에 의해 이루어지므로<sup>18,23</sup> 반응 용액 중의 요소 농도의 변화는 이트륨의 침전 반응 속도에 영향을 줄 것으로 판단된다. 이를 살펴보기 위하여 요소의 초기 농도를 0.3 M에서 5.0 M사이에서 달리하면서 시간에 따른 이트륨의 침전 속도를 측정하였다. 그 결과 Fig. 6에 나타낸 바와 같이 다른 반응 조건이 일정한 경우, 요소의 초기 농도가 높아질 수록 이트륨의 침전 속도는 빨라지고 있음을 알 수 있다. 이를 보다 정량적으로 살펴보기 위해 요소의 초기 농도에 따른 이트륨의 침전 속도 값(mole/L.min)을 구하여 도시하였다. 그 결과, Fig. 7에 나타낸 바와 같이, 요소 초기 농도가 약 1.0 M이하인 경우, 요소 농도가 증가하면

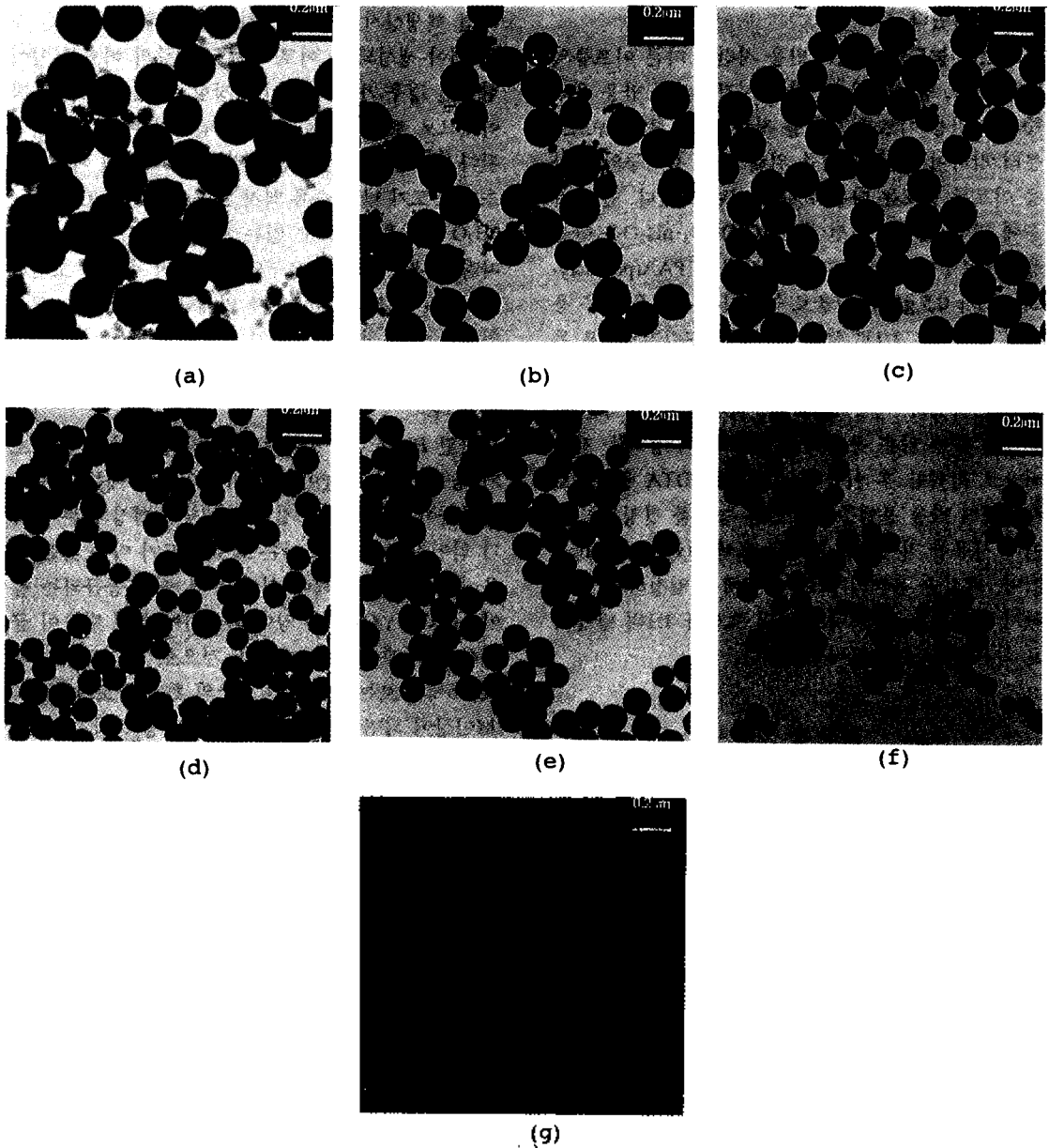


Photo 1. TEM micrographs of yttrium compound particles prepared by aging aqueous solutions of different urea concentration as (a) 0.04 M (b) 0.1 M (c) 0.5 M (d) 1.0 M (e) 2.0 M (f) 4.0 M (g) 7.0 M (Under preset condition of  $[Y(NO_3)_3]=0.02$  M,  $pH=6.0$ , aging temp. $=95$  °C).

반응 속도는 거의 직선적으로 증가하는 반면, 요소 초기 농도가 약 1.0 M 이상이 되면 반응 속도는 더 이상 직선적으로 증가하지 않으며, 약 4.0 M에 도달해서는 요소 농도 증가에 따른 반응속도의 증가가 더 이상 없는 포화점에 도달했음을 알 수 있다.

이와 같은 현상이 나타나는 이유는 다음과 같이

설명할 수 있다. 즉, 요소 농도가 약 1.0 M보다 낮은 경우는 요소 분해에 의해 생성되는 음이온( $CO_3^{2-}$  및  $OH^-$ ) 농도가 주위의 이트륨 농도( $Y^{3+}$ )에 비해 아주 낮으므로 생성되는 음이온은 즉시 주위의 이트륨 이온과 반응하여  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전을 형성할 수 있다. 따라서 생성되는 음이온은 모두 침전 반응에

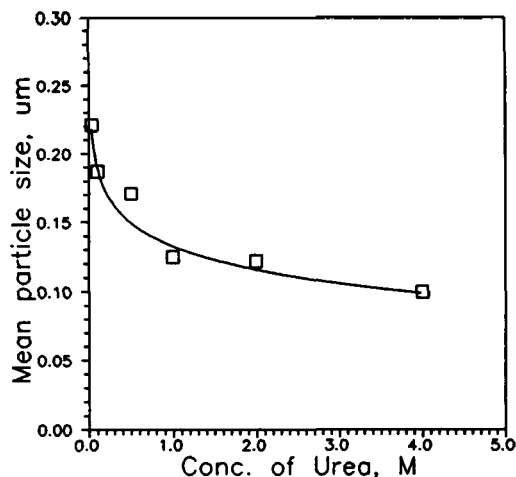


Fig. 5. The relationship between mean particle size and initial concentration of urea. (Under preset condition of  $[Y(NO_3)_3]=0.02$  M,  $pH=6.0$ , aging temp.=95 °C).

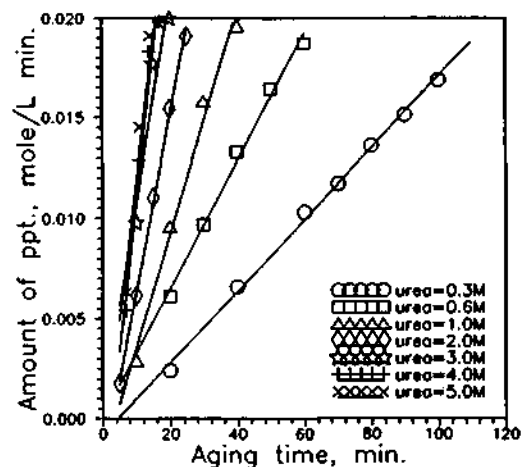


Fig. 6. The relationships between precipitated amount of yttrium and aging time at various initial concentrations of urea. (Under preset condition of  $[Y(NO_3)_3]=0.02$  M,  $pH=6.0$ , aging temp.=95 °C).

참여하게 되어, 요소 농도가 높아짐에 따라 음이온 생성량이 많아지고 침전 반응 속도는 비례해서 직선적으로 증가할 수 있는 것으로 판단된다.

그러나 요소 초기 농도가 높아져 생성되는 음이온의 농도가 주위의 이트륨 이온의 농도보다 높아지게 되면, 생성된 음이온들 중 일부는 이트륨 이온과 즉시 반응하지 못하게 되며, 이 경우 음이온 중  $CO_3^{2-}$  이온은 Fig. 8에 나타낸 평형 관계에 의해 다음과 같은 반응을 거치면서 즉시 소비되어 버릴 것이다.<sup>26,27</sup>

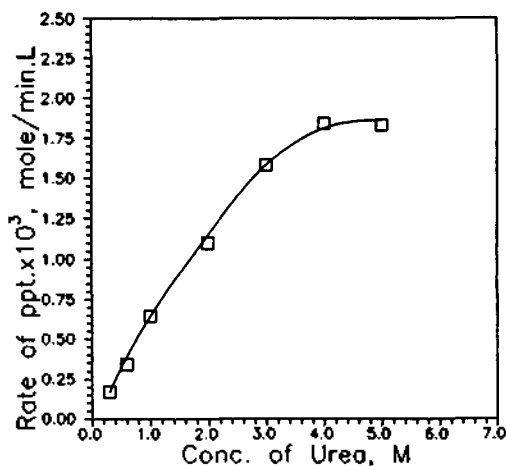


Fig. 7. The precipitation rate of yttrium as a function of initial concentration of urea.

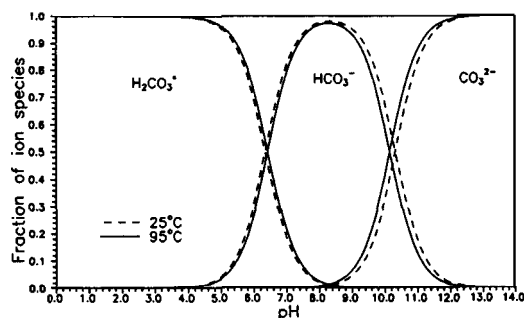
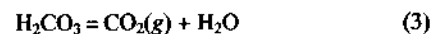
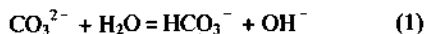


Fig. 8. Fractional composition diagram for Carbonic Acid.<sup>26,27</sup>



따라서 요소 농도가 1.0 M 보다 높은 경우에는, 요소의 분해 반응에 의해 생성된  $CO_3^{2-}$  이온 중 일부가 반응에 참여하지 못하고  $HCO_3^-$ ,  $H_2CO_3$  및 이산화탄소 등으로 소비되므로, 더 이상 요소 농도의 증가에 비례해서 반응 속도가 직선적으로 증가하지 못하게 되는 것으로 판단된다.

요소의 초기 농도가 더욱 증가하여, 약 4.0 M에 이르게 되면 요소의 분해에 의해서 생성되는 음이온의 농도가 주위의 이트륨의 농도에 비해 아주 높아져, 생성되는 음이온 중 많은 양이 반응에 참여하기 못하고  $HCO_3^-$ ,  $H_2CO_3$  및 이산화탄소 등으로 소비되므로, 요소 초기 농도 증가에 따른 음이온의 증가가 더 이상 침전 속도의 증가를 가져오지 못하는 포화

상태에 이르는 것으로 판단된다. 따라서 반응 속도 측면에서 볼 때, 본 실험의 조건하에서는, 요소의 초기 농도를 4.0 M 이상으로 하는 것은 의미가 없다.

또한, 균일 침전법을 공업화하는 경우, 요소의 과잉 사용은 비경제적일 뿐만 아니라, 반응 용액을 폐기하는 경우 용액내 남아 있는 미분해 요소로 인해 수질 오염 등 환경 문제를 유발하여 환경 처리 비용을 증가시키므로, 주어진 제조 공정 조건에서, 본 실험 내용과 같은 과정을 거쳐, 요소의 적정 초기 농도를 결정하는 것은 공업적 및 환경적 측면에서도 대단히 중요한 것으로 판단된다.

한편, 위 반응식들에서 알 수 있는 바와 같이,  $\text{CO}_3^{2-}$  이온이 침전반응에 참여하지 못하고  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{H}_2\text{CO}_3$  및 이산화탄소 등으로 소비되는 경우, 용액 중  $\text{OH}^-$ 의 농도는 증가하게 되어, 요소 농도가 높을수록 침전 반응 중인 용액의 반응 pH는 높을 것으로 예측된다. 이에, 요소의 초기 농도가 서로 다른 경우에 있어, 반응 중인 용액의 pH를 측정된 결과, Fig. 9에서 나타낸 바와 같이 요소의 초기 농도가 높을수록 반응 중인 용액의 pH가 높아 위의 예측을 확인할 수 있었다. 즉, 이 그림에서 알 수 있는 바와 같이 요소 농도가 약 1.0 M 보다 낮아, 생성되는  $\text{CO}_3^{2-}$  이온이 대부분 반응에 참여한다고 판단되는 경우(즉, 0.3 M 및 1.0 M의 경우)에는 반응 중인 용액의 pH가 약 5.5~6.0 사이를 유지하나, 요소 농도가 높아

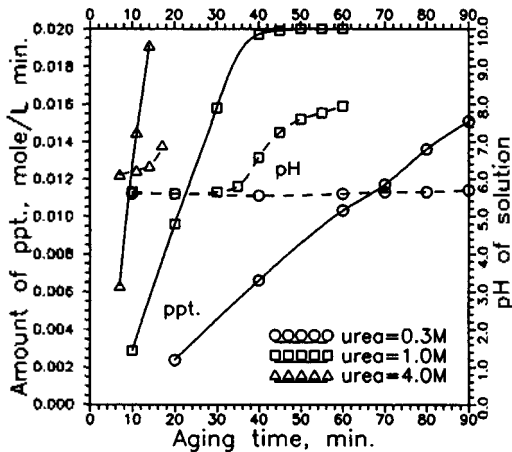


Fig. 9. The variations of precipitated amount and pH of the solution with aging time at various initial concentrations of urea. (Under preset condition of  $[\text{Y}(\text{NO}_3)_3]=0.02 \text{ M}$ ,  $\text{pH}=6.0$ , aging temp. =  $95^\circ\text{C}$ ).

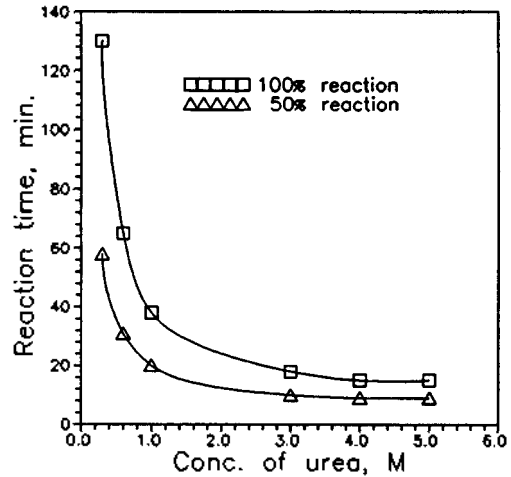


Fig. 10. The reaction time of complete precipitation as a function of initial concentration of urea. (Under preset condition of  $[\text{Y}(\text{NO}_3)_3]=0.02 \text{ M}$ ,  $\text{pH}=6.0$ , aging temp. =  $95^\circ\text{C}$ ).

$\text{CO}_3^{2-}$  이온의 일부가 반응에 참여하지 못하고  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{H}_2\text{CO}_3$  및 이산화탄소 등으로 소비된다고 판단되는 경우(즉, 4.0 M의 경우)에는 용액의 반응 pH는 약 6.3 이상을 유지하는 것으로 관찰되어, 요소의 초기 농도가 높은 경우 생성된  $\text{CO}_3^{2-}$  이온 중 일부가 반응에 참여하지 못하고  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{H}_2\text{CO}_3$  및 이산화탄소 등으로 소비되면서 용액중으로  $\text{OH}^-$  이온을 제공한다는 것을 간접적으로 확인할 수 있었다.

한편 요소의 초기 농도가 높아지는 경우 반응 속도는 비례적으로 증가 후 포화되는 양상을 보임에 따라 반응 완료 시간은 Fig. 10에 나타낸 바와 같이 쌍곡선 적으로 감소하는 것으로 조사되었다.

## 결론

균일 침전법에서 침전제인 요소의 초기 농도가, 생성되는  $\text{Y}(\text{OH})\text{CO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$  침전의 입도, 형상 및 침전 반응 속도 등에 미치는 영향을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 요소를 사용한 균일 침전법에서 요소의 초기 농도가 높을수록 얻어지는 균일 입도 초미분  $\text{Y}(\text{OH})\text{CO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$  침전의 평균 입도는 작아지며, 일정농도(본 실험조건에서는 4.0~7.0 M 사이의 농도) 이상으로 높아지면 급격한 침전 반응으로 인해 반응 후 균일 입도 초미분의 침전 대신 불규칙한 형상의 응집된 큰 침전이 얻어진다.

2. 균일 침전법에서, 보다 미세한  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전을 얻기 위해서는 초기 이트륨 농도를 낮추기 보다는 초기 요소 농도를 높이는 것이 대량 생산의 측면에서는 보다 유리하다.

3. 본 실험 조건에서, 요소의 초기 농도가 약 1.0 M 이하인 경우에는 요소의 초기 농도가 증가함에 따라 반응 속도는 직선적으로 증가하나, 약 1.0 M 이상이 되면 요소의 초기 농도가 증가하여도 반응 속도는 더 이상 직선적으로 증가하지 않게 되며, 약 4.0 M에 도달해서는 요소의 초기 농도 증가에 따른 반응 속도의 증가가 더 이상 없는 포화점에 도달하였다. 이와 같은 결과에 따라 반응 완료 시간은 요소의 초기 농도가 증가함에 따라 쌍곡선 적으로 감소하였다.

4. 본 실험 조건에서 요소의 초기 농도가 약 1.0 M 이상인 경우, 요소의 초기 농도가 증가하여도 반응 속도가 더 이상 직선적으로 증가하지 않는 이유는, 반응 용액 중 존재하는 이트륨이온( $Y^{3+}$ )량에 비해 공급되는 음이온( $CO_3^{2-}$  및  $OH^-$ )량이 상대적으로 많아 일부  $CO_3^{2-}$  이온이 반응에 참여하지 못하고  $HCO_3^-$ ,  $H_2CO_3$  및 이산화탄소 등으로 소비되기 때문인 것으로 판단된다.

5. 반응 속도를 더 이상 증가시키지 못하는 요소의 과잉 사용은 비경제적일 뿐만 아니라, 반응 용액 중 남아 있는 미분해 요소로 인해 수질 오염 등의 환경 문제를 유발시키므로, 얻고자 하는  $Y(OH)CO_3 \cdot nH_2O$  침전의 크기 및 침전 반응 속도 등을 고려하여 적절한 요소의 초기 농도를 결정하는 것이 공업적 및 환경적 관점에서 중요하다고 판단된다.

### 인 용 문 헌

1. Yoldjian, G. J. *Less-Common Metals* **1985**, *111*, 17-22.
2. Wen, T. L.; Hebert, V.; Vilminot, S.; Bernier, J. C. *J. Materials Sci.* **1991**, *26*, 3787-3791.
3. Gupta, C. K.; Krishnamurthy, N. *International Ma-*

- terials Reviews* **1992**, *37(5)*, 1.
4. Falconnet, P. J. *Less-Common Metals* **1985**, *111*, 9-15.
5. Kilbourn, B. T. *Ceram. Bulletin* **1984**, *63(5)*, 678-679.
6. Kilbourn, B. T. *J. Less-Common Metals* **1985**, *111*, 1-8.
7. 田中良平, 金屬, **1992**, *62(5)*, 2-8.
8. 川崎要造, *ibid*, **1992**, *62(5)*, 9-15.
9. 螢光體 핸드북, 螢光體 同學會編, オ-ム社, 東京, 1987; p 10-13.
10. Sordelet, D. J.; Akinc, M. *J. Am. Ceram. Soc.* **1988**, *71(12)*, 1148-1153.
11. Sugimoto, T. *Adv. Colloid Interface Sci.* **1987**, *28*, 65-108.
12. Akinc, M.; Sordelet, D. *Adv. Ceram. Mater.* **1987**, *2(3A)*, 232-238.
13. Matijevic, E. *MRS Bulletin* **1989**, *14(12)*, 18-21.
14. Akinc, M.; Sordelet, D. J.; Munson, M. *Adv. Ceram. Mater.* **1988**, *3(3)*, 211-216.
15. 千葉淳治, 工業レアメタル, **1989**, *96*, 85-90.
16. Matijevic, E. *Pure and Appl. Chem.* **1988**, *60(10)*, 1479-1491.
17. Beattie, J. K. *Pure and Appl. Chem.* **1989**, *61(5)*, 937-941.
18. Aiken, B.; Hsu, W. P.; Matijevic, E. *J. Am. Ceram. Soc.* **1988**, *71(10)*, 845-853.
19. Sordelet, D.; Akinc, M. *J. Colloid Interface Sci.* **1988**, *122(1)*, 47-59.
20. 권영식, 김연식, *대한요업학회지*, **1996**, *33(5)*, 495.
21. Shaw, W. H. R.; Bordboux, J. J. *J. Am. Chem. Soc.* **1955**, *77*, 4729-4733.
22. Harris, D. C. *Quantitative Chemical Analysis (2nd Ed.)*, Freeman, New York, 1977, p 726.
23. 최규원, *분석화학*, 박영사, 서울, 1987, p 478.
24. 최규원, *Ibid*, p 476.
25. Lamer, V. K.; Dinegar, R. H. *J. Am. Chem. Soc.* **1950**, *72*, 4847.
26. 최규원, *정성분석*, 박영사, 서울, 1977, p 407.
27. Butler, J. N. *Carbon Dioxide Equilibria and Their Applications*; Addison-Wesley: Menlo Park, U.S.A., 1982, p 21.