

## 마이크로파에 의한 고무용 충전제로서의 Alumina Powder의 제조에 관한 연구

박 찬 영<sup>†</sup> · 황 은 희\* · 민 성 기  
부경대학교 공과대학 고분자공학과, \*(주)LG 실트론  
(1998년 6월 17일 접수)

### Study on the Preparation of Alumina Powders used as a Rubber Filler with a Microwave Extraction System

Chan Young Park<sup>†</sup>, Eun Hee Hwang\* and Seong Kee Min

Dept. of Polymer Engineering, Pukyong National University, Pusan 608-739, Korea

\*Single Crystal Team 2, LG Siltron Inc., Kyungbuk 730-350, Korea

(Received June 17, 1998)

**요약** : 고무배합물의 충전제로 사용되는 알루미나 분말의 제조에 있어서 재래식 및 마이크로파 에너지원에 의하여 황산용액중의 카올린으로부터 알루미나를 얻는다. 이때 카올린으로부터 알루미나 분말의 최대 추출율은 각각 재래식의 경우는 80°C, 1M 황산, 180분에서 72.8%이고, 마이크로파 추출공정의 경우는 90°C, 1M 황산, 60분에서 99%였다. 또한 추출된 시료는 TG/DTA, XRD, SEM, Atomic Emission Spectroscopy 및 BET법에 의하여 분석하였다.

**ABSTRACT** : Alumina powders used as a filler in rubber compounding was extracted from kaolin in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> solution employing conventional thermal and microwave energy resources. Maximum degrees of alumina extraction from kaolin were 72.8% at 80°C, 1M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, and 180min in the conventional thermal extraction process and were 99.0% at 90°C, 1M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, and 60min in the microwave extraction one, respectively. The samples synthesized in both processes were analyzed by means of TG/DTA, XRD, SEM, Atomic Emission Spectroscopy, and BET method. Studies are presently under way to unravel the basic interaction mechanisms between microwave and alumina power for high rates of alumina extraction from kaolin in the microwave extraction process.

**Keywords** : Alumina Powder, Rubber Compounding, Microwave Extraction.

---

<sup>†</sup>대표저자

## I. 서 론

마이크로파 열원을 이용한 공정은 에너지 절약 및 공정 시간의 단축 등의 차원에서 오래 전부터 식료품의 제조, 광석과 펄프의 건조, 고무의 가황 공정 등에 공업적으로 이용되고 있다.<sup>1~5</sup> 또한 최근에는 내부 발열, 선택 가열 및 급속 가열 등의 특성을 지닌 마이크로파를 산업폐기물의 처리, 에폭시수지 중합, 고분자 복합재료의 제조, 석탄의 가공, 무기물의 분해 등에 응용을 시도한 연구가 활발히 진행되고 있다.<sup>6~13</sup>

고무배합물에 사용되는 무기계 광물의 예로는 카본 블랙, 탄산칼슘, 황산바륨,  $TiO_2$ ,  $SiO_2$ ,  $MgO$ ,  $ZnO$  등이 있으며 각각 보강재, 충전제 또는 기타 배합약품으로서의 역할을 한다. 한편 무기계 광물에 함유된 화학 성분을 분석하기 위하여 마이크로파 장내에서 무기계 광물을 산 처리하여 분해 추출시키면 마이크로파의 내부 가열과 기계적인 교반 효과에 기인하여 매우 짧은 시간에 분석할 성분들이 추출되어 화학성분의 분석이 가능<sup>6,14</sup>하며, 따라서 이 보고는 무기계 광물로부터 필요 성분의 추출 가능성을 제시하여 준다.

또한 알루미늄은 무기계 광물 가운데 하나로서 화학적 안정성, 고융점, 전기 절연성 및 높은 기계적 강도를 지니므로 보강재료, 기능재료, 구조재료, 절연재료, 전자재료 등 많은 분야에 응용되고 있다. 최근까지 알루미늄은 상업적으로 대량 생산이 가능한 Bayer법<sup>15</sup>으로 주로 제조되고 있는데, 이 공정의 순서를 보면 우선 주 원료인 bauxite를 분쇄하여 NaOH 용액과 분쇄 석회를 함께 섞어 약 200°C에서 증기로 가열 처리해서  $NaAlO_2$ 를 생성시킨다. 생성된  $NaAlO_2$ 로부터 알루미늄을 추출 여과해서  $SiO_2$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $TiO_2$  등의 불순물을 제거하고 가수 분해시켜  $Al(OH)_3$ 로 침전 회수한 후 하소 처리하여  $Na_2O$ 가 0.5wt% 정도 함유된 알루미늄분말을 얻는다. 알루미늄의 함량이 적은 alunite, nepheline, sillimanite, andalusite, kaolin, mica 등과 같은 non-bauxite로부터 상업적으로 유용한 알루미늄을 추출하기 위하여 많은 연구가 진행

되고 있는데, 특히 non-bauxite를 분쇄 열처리한 후의 산처리 공정을 Bayer법에 첨가한 산 처리 침전법에 의하여 효과적으로 알루미늄을 추출할 수 있다고 알려져 있다.<sup>16,17</sup>

따라서, 본 연구에서는 고무배합물의 충전제로서 응용하기 위하여 카올린으로부터 알루미늄 분말을 제조하고자 한다. 한편 국내에서는 bauxite가 전혀 산출되지 않으므로 자원 활용의 차원에서 국내에 풍부한 카올린으로부터 산처리 침전법을 이용한 알루미늄 분말의 추출 공정에 있어서 추출 수율을 높이기 위하여 마이크로파 열원의 적용 가능성을 검토하였다. 즉 반응조건들의 변화에 따른 알루미늄의 추출량을 비교하기 위하여 재래식 열원과 마이크로파 열원의 두 가지 공정에 의하여 실험에 임하였으며, 추출 합성된 침전물로부터  $\beta-Al_2O_3$ 와  $\gamma-Al_2O_3$  분말을 제조하였다.

## II. 실험

본 실험에서는 마이크로파 추출 장치로서 주파수 2.45GHz, 출력 700W인 가정용 전자 레인지(LG Electronic Co.) 2대를 Fig. 1(a)와 같이 개조한 후 부착하여 사용하였다.

온도제어기(Hanyoung MX-9)를 전자 레인지의 마그네트론 파워 릴레이에 접속하여 On-Off 방식으로 반응용기 내의 온도를 자동 제어하였다. 마이크로파에 의한 반응물의 효율적 가열을 위하여 마이크로파를 통과시키는 pyrex 삼구 플라스크를 유리 섬유로 단열 시킨 후, 오븐의 중앙에 위치하도록 하고, 바닥에 저온용 알루미늄 단열재를 설치하였다. 반응물의 온도를 측정하기 위하여 전자 레인지 용기의 윗면에 지름 1cm의 구멍을 뚫어 K형 열전대가 들어갈 수 있도록 하였다. 마이크로파의 간섭을 억제하여 정확한 반응용액의 온도를 측정하도록 Fig. 1(b)와 같이 스테인레스강으로 차폐된 K형 열전대를 사용하였고, 수용액으로부터 K형 열전대를 보호하기 위하여 5mm의 pyrex관으로 봉하였다.

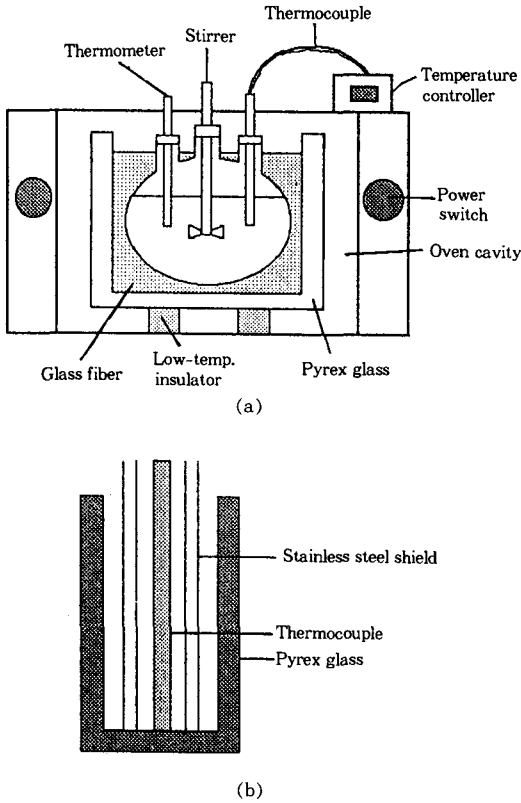


Fig. 1. Schematic representation of (a) a microwave extraction system and (b) a shielded thermocouple.

Table 1. Chemical Composition of Kaolin

Constituents	wt%
SiO <sub>2</sub>	45.00
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	38.50
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.98
CaO	0.49
Na <sub>2</sub> O	0.48
Ig. loss	13.78

알루미나 분말을 얻기 위한 초기 시료로서는 국내산의 halloysite질 백색 카올린을 사용하였으며 그것의 화학분석 결과를 Table 1에 나타내었다. 이 시료를 건식 분쇄하여 200mesh 통과분을 건조시킨 후, 산처리에서 Al<sup>3+</sup> 이온의 용출을 극대화하기 위하여 전기로에서 800℃에서 3시간 동안 하소(煨燒)시켰다.

9g의 하소된 카올린 분말과 1M~3M 농도의 황산 수용액 300ml를 삼구 플라스크 속에 투입하여 70~90℃, 20~240분의 반응조건에서 산 처리하였다. 산 처리된 용액은 여과한 후 Al<sup>3+</sup>과 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>이온 등을 함유한 여과액 및 불용성 실리카가 주성분인 잔사로 분리하였다.

α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분말을 얻기 위하여 분리된 여과액을 침전제인 900ml의 에탄올에 5ml/min의 속도로 drop하여 겔상으로 침전시킨 후, 실온에서 24시간 동안 유지하여 침전물을 얻었다. 침전물에 잔존하는 황산을 제거하기 위하여 수 차례에 걸쳐서 에탄올로 세척한 후, 세척된 침전물을 60℃에서 3일 동안 건조시켰다. 추출 합성된 침전물은 1100℃에서 1시간 동안 하소하였다. 각 공정에서 반응조건의 변화에 따른 알루미나의 추출율은 일정량의 카올린에 함유된 알루미나의 중량 당 산처리를 통해 얻은 추출 합성된 침전물을 1000℃에서 1시간 동안 하소하여 얻은 시료의 중량 비로 계산하였다. β-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분말을 얻기 위하여 마이크로파 산처리 공정에서 얻어진 여과액에 NaOH를 Na<sub>2</sub>O/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(몰비)=1:4의 조건으로 넣어서 NaOH가 완전히 용해될 때까지 계속 교반하였다. NaOH가 완전히 용해된 여과액으로부터 상기와 동일한 방법으로 세척 건조된 침전물을 얻었으며 추출 합성된 침전물은 1400℃에서 2시간 동안 하소(煨燒)하였다.

시료들의 상분석을 하기 위해서 X-선 회절장치(D/MAX-2400, Rigaku, Japan)를 사용하였으며, 측정 조건은 Ni-filtered CuKα, 35kV-25mA, 4°/min의 주사 속도로 하였다. 화학성분 분석은 ICP 원자 방출 분광계(ICP-IRIS, Thermo Jarrel Ash, U.S.A.)를 사용하였다. 침전물들의 열분해와 이에 따른 중량 감소를 측정하기 위해서 TG-DTA(SSC-5200, Seiko, Japan)를 사용하였으며 승온 속도는 10℃/min로 하였다. 침전물들을 하소하여 얻은 시료들의 비표면적, 입자의 크기 및 입자의 분포를 관찰하기 위하여 각각 BET법(Quantasorb-1, Quantachrome Co., U.S.A.) 및 PSA법(SALD-2001, Shimadzu, Japan)을 사용

하였다. 시료들의 미세구조는 주사형 전자 현미경(S-4200, Hitachi Co., Japan)을 이용하여 관찰하였다.

### III. 결과 및 토론

마이크로파 및 재래식 열원을 이용한 산 처리 침전 공정에서 반응온도, 반응시간 및 황산 수용액 농도 등의 반응 조건을 변화시켜 수화 황산알루미늄을 추출 합성한 후, 일정량의 카올린에 함유된 알루미늄의 중량 당 추출 합성된 침전물을 1000℃에서 1시간 동안 하소하여 얻은 시료의 중량 비로서 알루미늄의 추출 정도를 비교 고찰하였다. Fig. 2는 90℃, 60분 조건하의 마이크로파와 80℃, 180분 조건인 재래식 열공정에서 황산 수용액 농도의 변화에 따른 알루미늄의 추출을 변화를 나타낸다. 마이크로파 공정은 재래식 열공정에 비하여 짧은 반응시간 동안에 상대적으로 극대화된 추출효과가 있음을 알 수 있었다. 반응 용액에 존재하는 물분자는 마이크로파 장내에서 분극화되어 급격한 정렬을 반복함으로써 내부 가열 및 기계적 교

란현상이 발생된다. 따라서, 집중적인 내부 가열 및 기계적 교란 현상이 하소된 카올린 분말 입자의 표면을 연속적으로 파괴하여 산이 공격할 수 있는 새로운 표면을 계속 제공하여 하소된 카올린으로부터 Al<sup>3+</sup> 이온의 용출을 용이하게 해주기 때문에 마이크로파 공정의 짧은 반응시간에도 불구하고 극대화된 추출을 얻는 것으로 판단된다. 한편, 두 공정에서 모두 황산 수용액의 농도가 증가할수록 알루미늄의 추출율이 감소하는 경향을 보이고 있다. 이는 주어진 반응 온도에서 농도의 증가에 따라 황산의 산화작용이 강하게 일어나므로 시료 내의 Al이 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>로 되려는 자기부동태화 현상<sup>18</sup>이 발생하여 용해도를 저하시키기 때문에 알루미늄의 추출율이 저하하는 것으로 사료된다.

Fig. 3은 1M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 60분 조건하의 마이크로파와 1M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 180분 조건의 재래식 열원에서 반응온도의 변화에 대한 알루미늄의 추출을 변화를 나타낸다. 산이 가열되면 Arrhenius 해리 이론에 따라

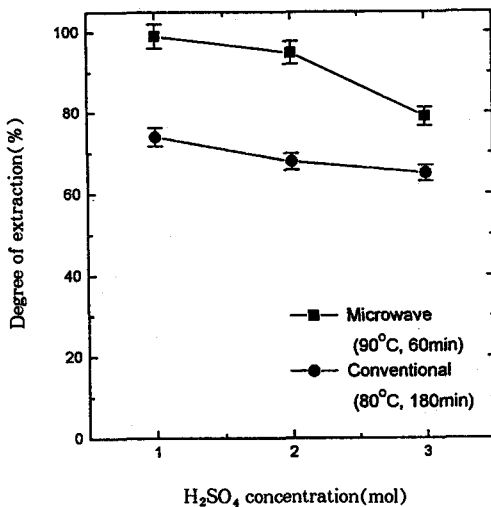
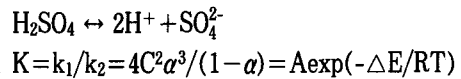


Fig. 2. Influence of acid concentrations on the degrees of alumina extraction from kaolin in the conventional thermal and the microwave extraction processes.

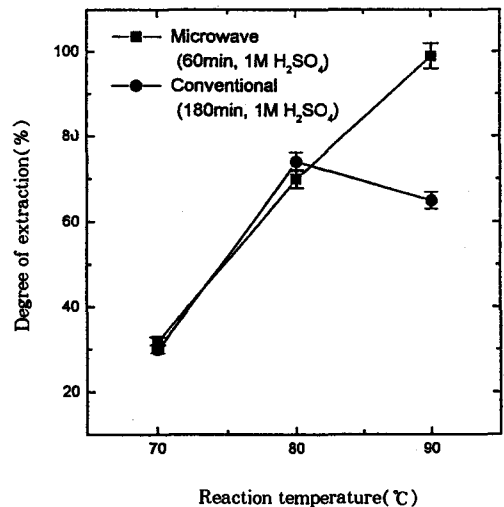


Fig. 3. Influence of reaction temperatures on the degrees of alumina extraction from kaolin in the conventional thermal and the microwave extraction processes.

여기서  $k_1$ 은 정반응 속도상수,  $k_2$ 는 역반응 속도상수,  $C$ 는 농도,  $K$ 는 평형상수,  $\alpha$ 는 해리도,  $A$ 는 상수,  $\Delta E$ 는 반응 활성화 에너지,  $R$ 은 기체상수,  $T$ 는 절대온도이다. 상기에 주어진 식으로부터 반응온도가 상승할수록 산의 해리도가 급격히 증가하여 산 분해력이 커지므로, 반응온도가 상승할수록 추출율이 급격히 증가함을 알 수 있다. 한편, 주어진 Fig. 4의 재래식 열공정에서는 반응온도가 상승할수록 추출율은 증가하다가, 90℃에서는 감소하는 경향을 나타낸다. 이와 같은 거동은 반응온도가 증가함에 따라 황산의 해리도가 커져서 시료로부터  $Al^{3+}$  이온의 추출량이 증가하다가, 90℃에서는 온도의 상승에 따라 황산의 강한 산화작용으로 인하여 시료내의 Al이  $Al_2O_3$ 로 되려는 자기부동태화 현상이 일어나서 용해도가 저하한 결과 알루미늄의 추출율이 감소하는 것으로 사료된다. 마이

크로파 공정에서는 반응온도가 상승할수록 추출율은 계속 증가하여 90℃에서 99.0%의 최대 추출율을 나타내었다. 이것은 한 연구결과<sup>19</sup>에 보고된 것처럼 마이크로파가 반응 활성화 에너지를 낮추어 재래식 열공정에 비하여 황산의 해리도를 증가시키거나 또는 반응온도의 상승에 의한 자기부동태화 현상을 억제하여 용해도의 저하를 방지함으로써 반응온도가 증가하여도 추출율은 계속 증가하는 것으로 사료된다.

하소된 카올린으로부터 알루미늄을 추출하기 위한 최적의 반응조건은 재래식 열공정에서는 80℃, 1M  $H_2SO_4$  및 180분이었고, 마이크로파 공정에서는 90℃, 1M  $H_2SO_4$  및 60분이었다. 최대 추출율을 나타내는 반응 조건에서 마이크로파와 재래식 열공정으로부터 추출 합성된 침전물의 시료들에 대한 X선 회절 패턴을 Fig. 4에 나타내었고, SEM을 통하여 관찰한 미세 사진을 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 4의 X선 회절 테

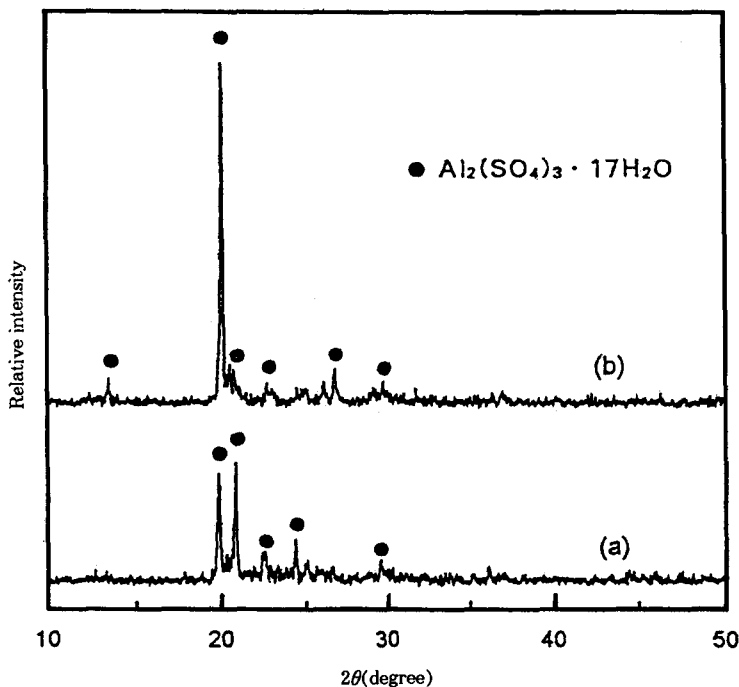


Fig. 4. XRD patterns of precipitates synthesized by (a) the conventional thermal and (b) the microwave extraction processes.

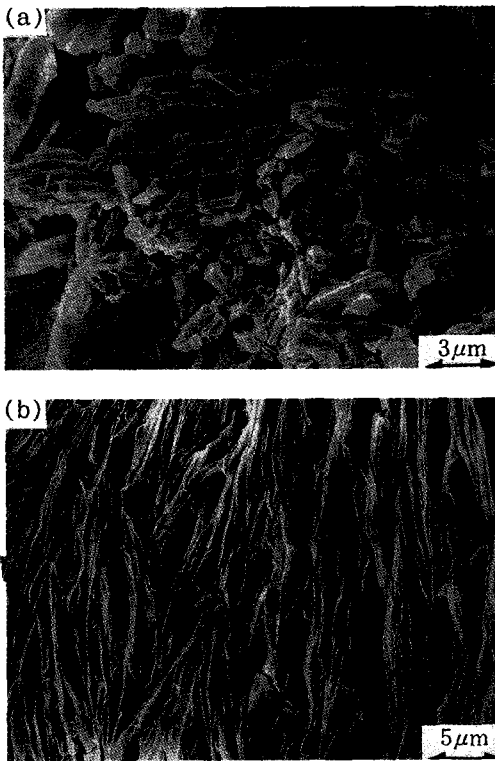


Fig. 5. SEM pictures of precipitates synthesized by (a) the conventional thermal and (b) the microwave extraction processes.

이터를 JCPDS 카드와 비교했을 때, 두 공정에서 추출 합성된 시료들 모두가 수화 황산 알루미늄인  $Al_2(SO_4)_3 \cdot 17H_2O$ 이었다. 결정수의 존재를 확인하기 위하여 DTA를 이용한 열분석 결과를 Fig. 6에 나타내었으며, 두 공정에서 추출 합성된 시료들 모두 Fig. 6에 나타난 바와같이 결정수의 탈리에 기인한 80~160°C 범위에서 완만한 흡열피크가 확인되었다. Fig. 5의 X선 회절 피크의 상대 강도를 비교하여 보면, 마이크로파 공정의 시료의 회절 피크가 재래식 열공정의 시료의 회절 피크보다 상대적으로 매우 크다. 이는 마이크로파 공정에서 추출 합성된 시료가 재래식 열공정에서 추출 합성된 시료에 비하여  $Al_2(SO_4)_3 \cdot 17H_2O$  결정립의 성장이 잘 진행되었음을 의미한다. 또한, Fig. 6의 시료들의 SEM 사진을 비교해보면, 재래식

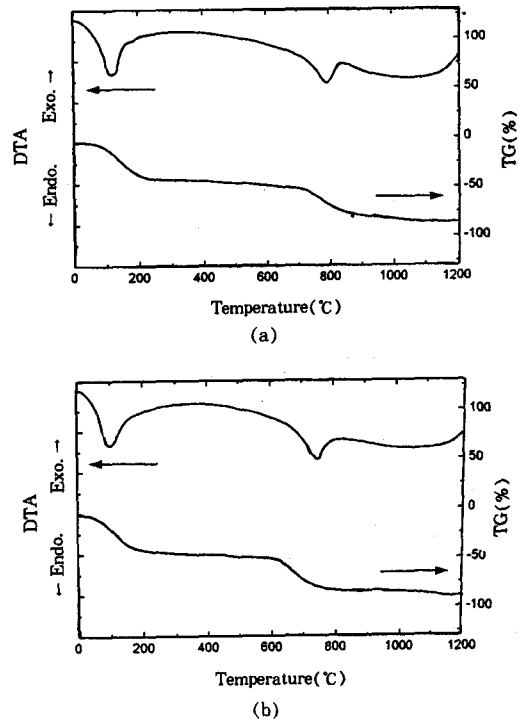


Fig. 6. DTA/TG curves of precipitates synthesized by (a) the conventional thermal and (b) the microwave extraction processes.

열공정의 시료는 1~3μm 크기의 능면체(rhombohedral)형의 결정으로 성장되었고, 마이크로파 공정의 시료는 결정립의 성장이 매우 빨라서 거대 크기의 판상으로 이루어진 층상구조로 성장되었음을 알 수 있었다. 이 결과는 X선 회절 결과와 매우 잘 일치한다고 볼 수 있다. 재래식 열공정에 비하여 마이크로파 공정에서 생성된 여과액에는 높은 농도의  $Al^{3+}$  이온이 존재하며 그것의 불순물 함량이 다를 뿐만 아니라 반응공정의 차이에 따라 pH의 값 또한 다르다. 따라서 여과액을 에탄올에 drop하여 침전시킬 때 상기의 조건들이 수화 황산 알루미늄의 핵 형성 및 결정립 성장에 영향을 미쳐서 마이크로파 공정의 시료는 높은 X선 회절 강도 및 판상으로 이루어진 층상구조의 특성을 갖는 것으로 추측할 수 있지만, 정확한 해석을 얻기 위하여 체계적인 연구가 요구되어진다.<sup>19</sup>

마이크로파와 재래식 열공정에서 추출합성된 침전 물을 1100°C, 1시간 동안 하소한 시료들에 대한 X선 회절 패턴을 Fig. 7에 나타내었고, SEM을 통하여 관찰한 미세사진은 Fig. 8에 나타내었다. 두 공정의 시료들 모두  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 이었고, 구형으로 응집된 분말상으로 존재하였다. 주어진 Table 2로부터 마이크로파와 재래

식 열공정의 시료들의 비표면적은 각각  $113.5\text{m}^2/\text{g}$ 과  $106.6\text{m}^2/\text{g}$  이었고, 입자의 평균 입경은 각각  $46.5\mu\text{m}$ 와  $26.3\mu\text{m}$ 이었다. 재래식 열공정에 비하여 마이크로파 공정 시료의 비표면적과 평균 입경이 상대적으로 큰 이유는 하소하기 이전의 상태인 수화 황산 알루미늄이 거대 크기의 판상으로 이루어진 층상구조로 존재

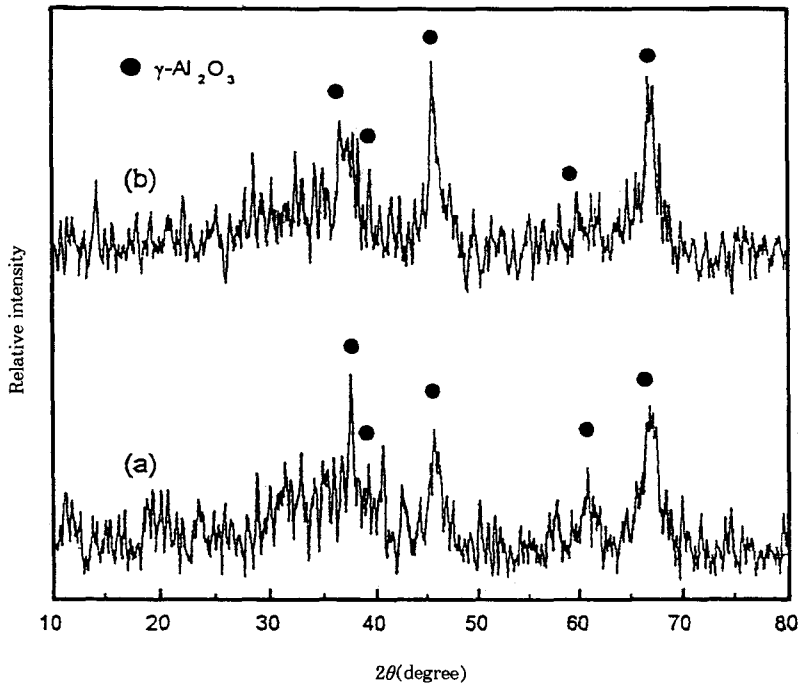


Fig. 7. XRD patterns of calcined powders of (a) the conventionally and (b) the microwave treated samples.

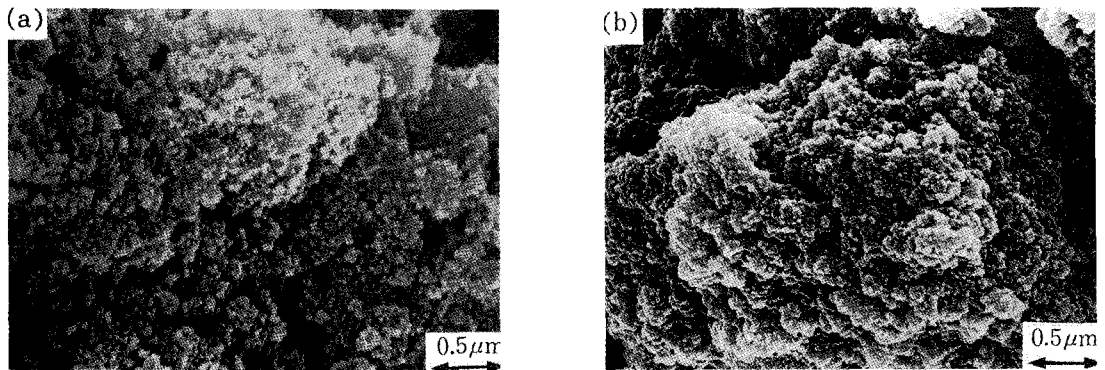


Fig. 8. SEM pictures of calcined powders of (a) the conventionally and (b) the microwave treated samples.

**Table 2.** Chemical Analyses and Powder Characteristics of Calcined Precipitates

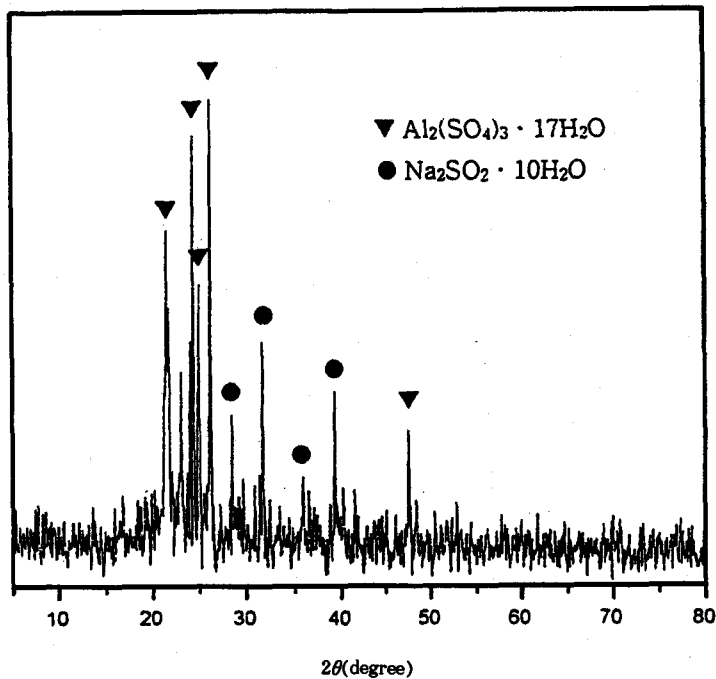
Analyses	Conventional	Micro-wave
Impurities(ppm)		
K	75.25	73.18
Na	54.86	62.80
Ca	24.93	25.49
Fe	5.34	3.18
Mg	3.34	3.35
Total(ppm)	163.72	168.00
AlO(%)	98.3	98.5
Mean particle diameter( $\mu\text{m}$ )	26.3	46.5
BET specific surface area( $\text{m}^2/\text{g}$ )	106.6	113.5

하고, 많은 기공을 함유하였기 때문이라 사료된다. 또한, 마이크로파와 재래식 열공정의 시료들에 존재하는 불순물들의 존재량이 주어진 Table 2와 같이 달랐다. 재래식 시료에 비하여 마이크로파 시료에서 Na성분의 함량이 많은 이유는 추출 공정중에서 마이크로파의

영향에 기인된 것이라 사료된다.

최대 추출율을 나타내는 반응 조건에서 마이크로파 공정으로부터 추출된 여과액에 특정양의 NaOH를 넣어서 추출 합성된 침전물에 대한 X선 회절 패턴을 Fig. 9에 나타내었다.

주어진 Fig. 9의 X선 회절 데이터를 JCPDS 카드와 비교했을 때, 추출 합성된 시료는 수화 황산 알루미늄인  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 17\text{H}_2\text{O}$ 와  $\text{Na}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 의 혼합 결정상으로 존재하고, SEM 미세사진으로부터  $0.1 \sim 0.5 \mu\text{m}$  크기의 판상구조로 이루어져 있음을 알 수 있었다. 결정수의 존재를 확인하기 위하여 DTA를 이용한 열분석을 행한 경우에 있어서, 주어진 Fig. 10과 같이 추출합성된 시료에서도 결정수의 탈리에 기인한  $80 \sim 160^\circ\text{C}$  범위에서 완만한 흡열피크가 확인되었다. 추출 합성된 시료로부터  $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$  분말을 제조하기 위하여  $1400^\circ\text{C}$ 에서 2시간 동안 하소하였을 때, 하소된 시료에 대한 X선 분석 결과  $\text{Na}^+$ 이온의 첨가에



**Fig. 9.** XRD pattern of precipitate synthesized at the mole ratio of  $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 = 1 : 4$  by the microwave extraction process.



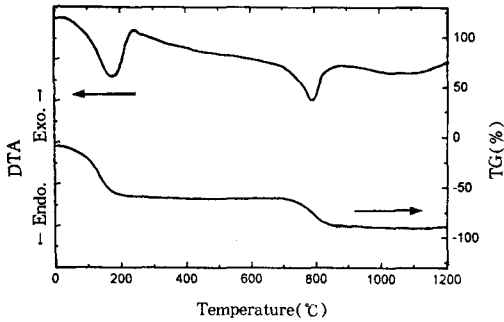


Fig. 10. DTA/TG curve of precipitate synthesized at the mole ratio of  $\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 = 1 : 4$  by the microwave extraction process.

기인하여  $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$  상으로 존재함을 알 수 있었다.

#### IV. 결 론

하소된 카올린으로부터 고무배합물의 충전제로 응용하기 위한 알루미나 제조공정에 있어서 최적의 추출조건은 재래식열 공정에서는  $80^\circ\text{C}$ ,  $1\text{M H}_2\text{SO}_4$  및 180분이었다고, 마이크로파 공정에서는  $90^\circ\text{C}$ ,  $1\text{M H}_2\text{SO}_4$  및 60분이었다. 그리고 알루미나의 최대 추출율은 재래식열 공정에서는 72.8%, 마이크로파 공정에서는 99.0%이었다. 또한 마이크로파 추출공정에 의하여 카올린으로부터  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  분말 및  $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$  분말의 제조가 가능하였다.

마이크로파에 의하여 발생되는 내부 가열과 연속적인 기계적 교란 현상이 하소된 카올린 분말 입자의 표면을 집중적으로 파괴시켜 산이 공격할 수 있는 새로운 표면을 연속적으로 제공하여  $\text{Al}^{3+}$  이온의 용출을 용이하게 한 결과, 마이크로파 공정에서의 짧은 반응 시간에도 불구하고 극대화된 알루미나의 추출이 가능하였다.

#### 참 고 문 헌

1. B. Krieger, *MRS Symp. Proc.*, **347**, 57(1994).

2. H. F. Schwarz, R. G. Bosisio, *J. Microwave Power*, **8**, 303(1973).  
 3. I. J. Chabinsky, *Elastomerics*, **115**(1), 17 (1983).  
 4. B. Krieger, R. D. Allen, *Rubber Chem. Technol.*, **54**, 183(1981).  
 5. M. A. Wheelans, *Natural Rubber Technology*, **6** (1), 13(1975).  
 6. H. M. Kingston and L. B. Jassie, *Anal. Chem.*, **58**, 253(1986).  
 7. J. Wei et. al., *Polym. Eng. & Sci.*, **33**(17), 1132 (1993).  
 8. R. Agrawal, L. T. Drzal, *J. Adhesion*, **29**, 63 (1989).  
 9. M. T. DeMeuse, *Polym. Mat. Sci. Eng.*, **66**, 428 (1992).  
 10. H. Jullien, H. Valot, *Polymer*, **26**, 506(1985).  
 11. J. Wei, J. Jow. *Sampe Journal*, **27**(1), 33 (1991).  
 12. J. Suzuki et. al., *J. Microwave Power & Electromagnetic Energy*, **25**(3), 168(1990).  
 13. D. A. Lewis et. al., *Polymer Preprint*, **28**(2), 330(1987).  
 14. L. B. Fischer, *Anal. Chem.*, **58**, 261(1986).  
 15. M. Madono, R. P. Racher, and M. K. Kunka, *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **76**, 66(1997).  
 16. L. D. Hart, Alumina Chemicals, **75**, *Am. Ceram. Soc. Inc.*, OH, (1990).  
 17. H. Juarez M. et. al., *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **76**, 55(1997).  
 18. E. R. Peterson, *MRS Symp. Proc.*, **347**, 697 (1994).  
 19. I. J. Chabinsky, *MRS Symp. Proc.*, **124**, 17 (1988).