

## 회분과 반회분의 혼합형 공정에 의해 생성된 단분산 실리카 미립자에 관한 연구

김 기 도 · 김 희 택<sup>†</sup>

한양대학교 공학대학 화학공학과  
(1999년 8월 19일 접수, 1999년 11월 23일 채택)

### A Study on the Monodispersed Silica Fine Particles Prepared by Using Batch-Semibatch Mixed Process

Ki Do Kim and Hee Taik Kim<sup>†</sup>

Department of Chemical Engineering, Hanyang University, Ansan 425-791, Korea  
(Received August 19, 1999; accepted November 23, 1999)

**요약:** 본 연구에서는 입경 제어가 용이하며 입자의 배열 상태가 치밀화된 매우 단분산된 실리카 미립자를 합성키 위하여 회분과 반회분의 적용 순서를 달리한 혼합 공정을 이용, TEOS(Tetraethylorthosilicate)의 가수분해로부터 실리카 미립자를 제조하였다. 실험은 회분과 반회분 각각의 공정을 회분-회분, 회분-반회분, 반회분-회분, 반회분-반회분의 네 가지 형태로 순서를 바꾸어 혼합 적용하였으며, 각각의 공정에서 생성된 실리카 입자에 대하여 평균 입경, 입도분포, 수율, 그리고 입자의 치밀화 등을 측정, 비교하였다. 실험결과 최종 평균 입경과 수율은 반회분-반회분 > 회분-반회분 > 회분-회분 > 반회분-회분 공정의 순서로 컸으며, 입도 분포와 입자의 치밀화 정도는 회분-반회분 > 회분-회분 > 반회분-회분 > 반회분-반회분의 순서로 단분산되고 치밀한 결과를 보였다. 이중 반회분-회분, 반회분-반회분과 같이 반회분식으로 먼저 실험하여 입자를 생성한 경우는 두 번째 공정의 종류에 관계없이 모두 2차 핵 생성이 일어나는 결과를 보였으며, 이중 반회분-회분의 혼합 공정에 의해서 생성된 입자는 2차의 회분식 공정 단계에서 반응물이 첨가된 후 시간이 경과함에 따라 오히려 입자가 감소하는 결과를 보였다. 결과적으로 상기 네 가지 공정 중 회분-반회분 순서의 혼합 공정에 의해 생성된 실리카 미립자가 가장 단분산되고 입자의 치밀화가 양호한 상태로 쉽게 입경 제어를 할 수 있음을 알 수 있었다.

**Abstract:** Modispersed silica fine particles were produced from the hydrolysis of  $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  by using batch-semibatch mixed systems. Four types of mixed process, i.e., batch-batch, batch-semibatch, semibatch-batch, semibatch-semibatch, were used in order to measure mean particle size, particle size distribution, yield, and packing density. As a result of the test, silica particles prepared by semibatch-semibatch process were larger than those produced from any other systems in particle size and yield. On the other hand, silica particles prepared by batch-semibatch process were better than those produced from any other systems in particle size distribution and packing density. Especially, it was found that particle size of  $\text{SiO}_2$  prepared by semibatch-batch process decreased with increasing the reaction time. Therefore, batch-semibatch process was a successful method for controlling the size, i.e., a narrow distribution of a particle size which ranges to several microns.

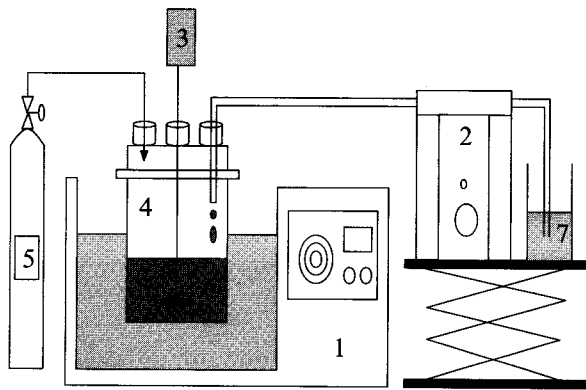
**Keywords:** monodispersed silica, hydrolysis, batch, semibatch

## 1. 서 론

최근 과학의 발달로 많은 제품들이 정밀하고 미세한 입자로 고기능성의 특징을 가지는 재료가 요구됨에 따라 화학적, 물리적 방법 등 여러 가지 원리들을 이용해 재료의 특성을 향상시키려는 연구에 많은 관심이 집중되고 있다[1]. 이러한 재료들 중 고도로 정선된 원료를 이용하여 화학 조성을 변화시킨 파인 세라믹스는 과거와는 달리 뛰어난 화학적, 물리적, 열적, 광학적 성질을 가지고 있으므로 그 응용 분야가 다양해져가고 있는 추세이다[2]. 이러한 파인 세라믹스의 특성을 만족시키기 위해서는 사용되는 원료인 산화물 입자의 물성이 중요하게 여겨지는데, 최근에는 이러한 산화물 입자들을 제조할 때 좀 더 쉽게 입자의 성장을 제어하고, 입도 분포를 줄이며, 입자 배열의 치밀화를 높여, 좋은 세라믹 제품을 만들려고 하는 데에 관심과 노력이 증가되고 있는 추세이다. 이와 같은 이유 때문에 입자 합성시 단분산이면서, 입경 제어가 쉬운 방법

들에 많은 관심을 가지게 되었다. 본 연구에서 합성키 위한 실리카는 재료의 기계적 물성을 개선하기 위한 충전제로서 가장 많이 사용되며, 그 외에 재료의 유연성 개선, 페인트의 안료, 접착제에서 증점과 침강 방지의 역할, 제지에서 광학적 특성, 치약에서는 점도 조절과 투명성의 역할, 농약에서 화학적 안정성의 역할 등 수 많은 응용 분야[3]에서 널리 사용되는 중요한 재료이다. 그런데 이러한 실리카 입자는 합성 시에 티타니아, 지르코니아와 같은 입자들과는 달리 가수 분해 속도가 느려 액상법에서도 입경 제어가 그다지 어렵지 않은 특징을 가지고 있으며, Stöber 등[4]을 비롯한 많은 사람들에 의해서 여러 가지 합성 방법이 상세히 소개되어 있었다. 그러나 이러한 방법들은 대부분이 회분식 공정에 의한 합성이기 때문에 사용되는 원료에 비해 생성되는 입자의 수율이 낮고 입경이 증가할수록 응집이 발생, 분산도가 좋지 않은 결과를 보이는 단점이 있다. 따라서 근래에는 치밀화된 단분산 입자를 합성키 위하여 반응이 진행되고 있는 동안 반응물이 계 내로 조금씩 첨가되어지는 반회분식 공정[5]을 사용하기도 하고, 입도 분포가 좁은 종자(seed) 입자를 얻은 후에 이 입자를 성장시키는 종자 성장(seed growth) 법[6,7]을 사용하여 이러한 문제점을 극복하려고 하였다.

<sup>†</sup> 주 저자 (e-mail: khtaik@mail.hanyang.ac.kr)



1. water bath 2. micro feed pump 3. stirrer 4. reactor  
5. N<sub>2</sub> gas 6. H<sub>2</sub>O solution 7. TEOS solution

Figure 1. Schematic diagram of the semibatch reactor system.

그러나 이러한 방법들도 단분산이며, 그와 동시에 수율이 높고 입경 제어가 쉬운 입자들을 합성하는 데에는 어려움이 있었다. 따라서 본 연구에서는 매우 치밀화된 단분산 입자임과 동시에 수율 등의 물성치를 만족시키는 실리카 미립자를 얻기 위하여 회분과 반회분식 공정의 어느 하나를 가지고 먼저 1차 종자 입자를 얻은 후에 2차로 또 한번의 반응을 통하여 종자 입자를 성장시키는 방법을 적용, 실리카 미립자를 제조하였다. 본 실험에서 사용된 공정은 네 가지 형태 즉, 회분-회분(B-B), 회분-반회분(B-S), 반회분-회분(S-B), 반회분-반회분(S-S)과 같이 순서를 바꾼 혼합 공정을 사용하였으며, 각각에 대하여 생성된 실리카 미립자의 평균입경, 입도분포, 수율, 치밀화 정도 등을 측정하여 상호 비교하였다. 또한 네 가지 형태의 혼합 공정에서 생성된 실리카 미립자의 형태 및 크기는 LaMer Model[8]를 적용하여 해석하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 시약

가수분해 물질인 Si(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>(tetraethylorthosilicate, TEOS) 일분의 고순도 화학연구소의 시약(99.999%)을 사용했으며, 물은 본 연구실에서 제조한 증류수를, TEOS와 H<sub>2</sub>O의 공통용매로 사용되는 에틸 알코올(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH)은 James Burrough(F.D.A) L.t.d(99.9%)의 것을, 촉매인 암모니아수(28%)는 일본의 편산 화학공업주식회사의 것을 사용하였다.

### 2.2. 실험 장치

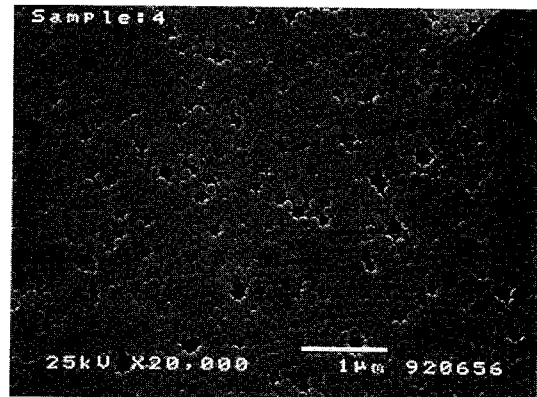
Figure 1에 반회분 공정에 대한 실험 장치도가 보여지고 있으며, 이 장치는 크게 항온조와 마이크로 펌프(EYELA MP-3, JAPAN)로 나누어 볼 수 있다. 한편, 회분식 공정의 실험은 반응 물질들을 동시에 혼합키 위해 마이크로 펌프를 사용하지 않았을 뿐 그 외의 장치도는 동일하였다.

### 2.3. 실험 방법

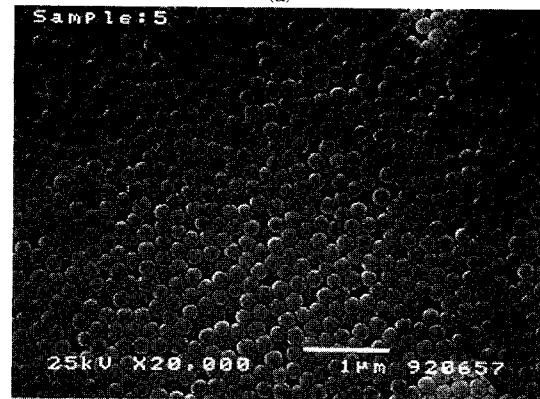
Si(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>를 평량하여 에틸 알코올 100 mL로 희석한 용액 (A)와 NH<sub>3</sub>(aq), H<sub>2</sub>O를 에틸 알코올로 녹인 100 mL 용액 (B)를 만든다. 반응물의 농도는 용액 (A)와 (B)의 혼합 후 농도가 각각 Si(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub> 0.5 mol/L, H<sub>2</sub>O 6.0 mol/L, 촉매인 NH<sub>3</sub> 0.7 mol/L가 되게 한다. 실험은 Table 1에 나타난 것처럼 상기에서 제조한 (A), (B)용액을 회분-회분, 회분-반회분, 반회분-회분, 반회분-반회분의 네 가지 순서의 형태로 2단계 혼합 실험을 하였으며, 회분식 실험

Table 1. Operating Systems Used for Preparation of Silica Fine Particles

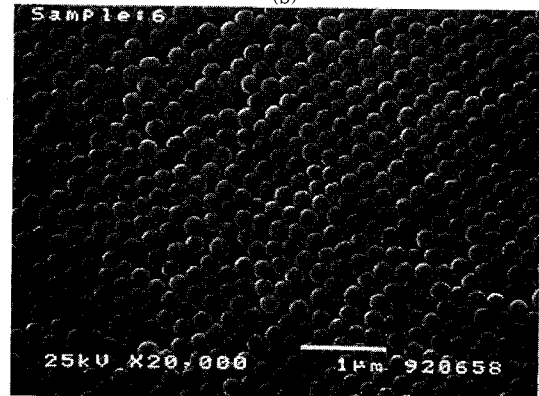
Operating system	B-B	B-S	S-B	S-S
First step	Batch	Batch	Semibatch	Semibatch
Second step	Batch	Semibatch	Batch	Semibatch



(a)



(b)



(c)

Figure 2. SEM micrograph of particles made at following conditions (1st step: batch, 2nd step: batch, Si(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub> 0.5 M, H<sub>2</sub>O 6.0 M, NH<sub>4</sub>OH 0.7 M): (a) 80 min, d = 120 nm; (b) 300 min, d = 184 nm; (c) 420 min, d = 230 nm.

의 경우 (A), (B)용액을 동시에 섞어 혼합하였고, 반회분식의 경우는 (B)용액을 반응기에 넣어두고 (A)용액을 반응기 내로 미소 량 첨가하였다. 그리고 각각의 실험에 대하여 입경, 입도분포, 수율,

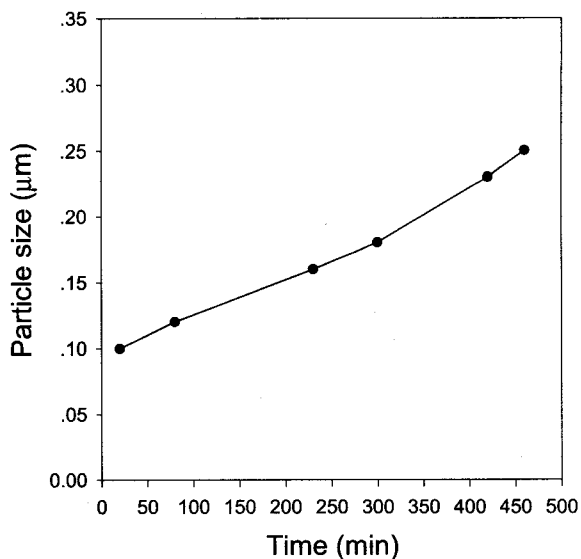


Figure 3. Change in particle size with reaction time (1st step: batch, 2nd step: batch).

수밀도 등을 비교 검토하였다. 상기 실험은 모두 150 rpm의 교반 속도와 15 °C의 반응 온도로 행하고 질소 분위기 하에서 건조하였으며, SEM(JEOL JSM-35 CF)과 light scattering analyzer(LPA-3000)로 생성된 실리카 미립자의 형태와 크기를 관찰하여 입도 분포를 측정하였다. 또한 본 연구에서의 수율은 합성된 생성물(SiO<sub>2</sub>) 입자의 중량(g)을 반응에 사용된 출발 물질(TEOS)의 중량(g)으로 나눈 수치(%)로 정의[9]하였으며, 생성된 SiO<sub>2</sub> 입자의 중량 측정은 반응이 끝난 용액을 약 80 °C에서 충분히 건조시켜 용매를 제거한 후 측정, 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

일반적으로 회분식 또는 반회분식과 같은 단일 공정에 의한 미립자 합성보다는 2가지 공정을 효과적으로 적절히 혼합하여 미립자를 합성하는 것이 입도분포, 수율, 그리고 입경 제어 측면에서 훨씬 유리하다고 볼 수 있다. 그 이유는 처음에 회분이나 반회분식으로 종자 입자의 역할을 하는 미립자를 합성해 놓은 후, 2차로 또 한번의 회분이나 반회분식의 실험을 함으로써 기존에 생성된 입자를 성장시키기 때문에 입경 제어가 보다 쉽기 때문이다[10].

3.1. 회분-회분의 순서로 실험

Figure 2는 TEOS 0.5 M, H<sub>2</sub>O 6.0 M을 회분 공정으로 1차 반응을 시키고, 일정시간 경과 후에 2차로 또 한번의 회분식 반응을 적용했을 때의 시간 경과에 따른 SEM 사진이다. (a)는 1차 회분식 반응이 끝나고 난 후 80분 경과후의 사진으로 평균 입경은 약 120 nm이었으며, 또 한번의 회분식 반응을 끝낸 후의 크기는 약 184 nm로 성장하였다(b). 두 번의 반응으로 생성된 미립자의 크기는 (c)에서 보는 것처럼 420분까지 230 nm로 계속 성장함을 볼 수 있다. 따라서 회분-회분의 혼합 공정에서 실리카 입자의 평균 입경은 반응 시간이 경과함에 따라 일정하게 성장하고 있음을 볼 수 있었으며(Figure 3), 입도 분포는 입경이 증가함에도 불구하고 양호함을 확인할 수 있었다.

3.2. 회분-반회분의 순서로 실험

Figure 4는 1차 회분식으로, 그리고 일정시간 경과 후에 2차 반

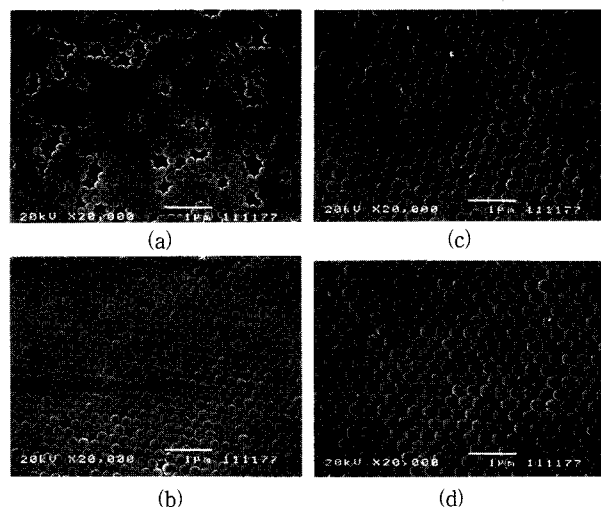


Figure 4. SEM micrograph of particles made at following conditions (1st step: batch, 2nd step: semibatch, Si(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub> 0.5 M, H<sub>2</sub>O 6.0 M, NH<sub>4</sub>OH 0.7 M): (a) 120 min, d = 150 nm; (b) 250 min, d = 225 nm; (c) 360 min, d = 325 nm; (d) 520 min, d = 370 nm.

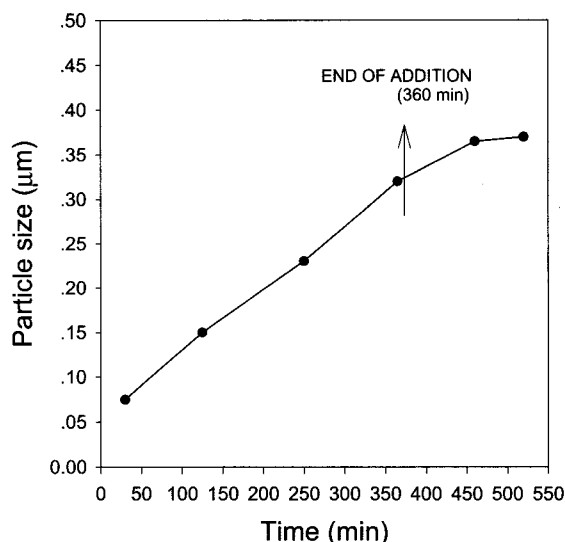
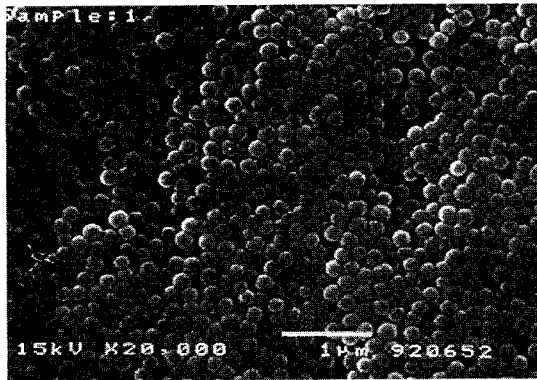


Figure 5. Change in particle size with reaction time (1st step: batch, 2nd step: semibatch).

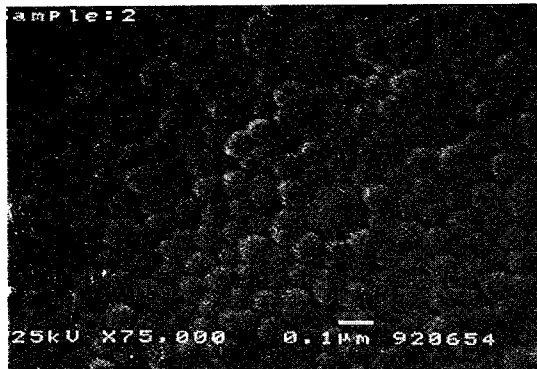
회분식으로 반응시켰을 때의 SEM 사진으로서 (a)는 회분식 실험 후 120분이 경과했을 때이며, 평균 입경은 약 150 nm로 측정되었다. 두 번째로 실시한 반회분식에서는 반응 시간이 250, 360, 520분으로 경과됨에 따라 평균 입경은 225, 325, 370 nm까지 성장하였고 육안으로 보기에 입도 분포의 상태는 상당히 양호한 결과를 보였다. (b)는 2차 반회분식 공정으로 반응이 진행되는 동안에, (c)와 (d)는 2차 반회분식 반응이 완전히 끝나고 난 후의 시간 경과에 따른 SEM 사진이다. 시간이 경과함에 따라 입자의 배열 상태가 조밀해 지면서 입도 분포가 균일하게 나타나는 것을 볼 수 있다. Figure 5는 반응 시간에 따른 입경의 변화 그림으로서 원료 물질의 첨가가 종료된 후 어느 정도 증가하다가 일정해지는 것을 볼 수 있다.

3.3. 반회분-회분의 순서로 실험

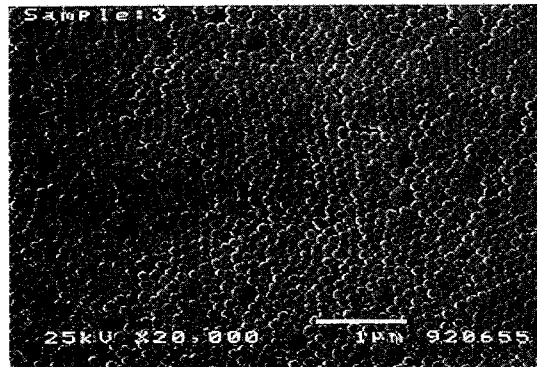
실험 3.1과 3.2에서는 먼저 회분식 공정으로 반응시켜 핵을 생성



(a)



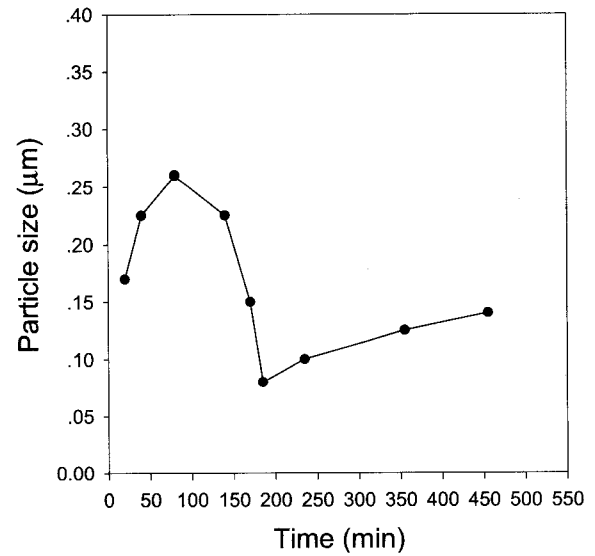
(b)



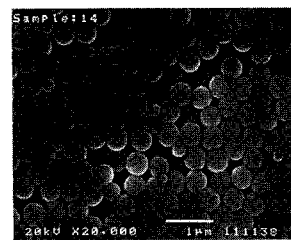
(c)

**Figure 6.** SEM micrograph of particles made at following conditions (1st step: semibatch, 2nd step: batch,  $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  0.5 M,  $\text{H}_2\text{O}$  6.0 M,  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.7 M): (a) 80 min,  $d = 263$  nm; (b) 180 min,  $d = 88$  nm; (c) 470 min,  $d = 127$  nm.

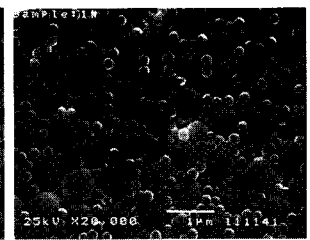
시킨 후 2차로 또 한번의 반응을 각각 회분과 반회분의 순서로 혼합 적용시켰으나, 3.3과 3.4 실험에서는 반회분식으로 먼저 반응시켜 핵을 생성시킨 후 2차 반응을 각각 회분과 반회분 공정의 순서로 적용 시켰다. Figure 6의 (a)는 1차 반회분식 반응이 종료된 후의 SEM 사진으로서 평균 입경은 약 263 nm이었다. (b)는 2차로 반응물을 동시에 혼합하는 회분식 반응을 실시한 후의 사진으로서 앞서 실시한 결과와는 달리 평균 입경이 88 nm로 오히려 작아지고, 입자의 배열 상태도 2차 핵 생성으로 인하여 크고 작은 입자가 서로 섞여있는 형태의 결과를 볼 수 있었다. 이와 같은 평균 입경의 감소는 회분식으로 2차 반응을 실시한 반응 초기에 용해도 차이로 인하여 1차 반회분 공정 시 이미 생성된  $\text{SiO}_2$ 에서 2차 회분식 반응 과정에서 TEOS의 가수분해로 생긴 중간 생성물, 즉  $\text{Si}(\text{OH})_4$ 로의 역반응에 의한 것으로 사료된다. Figure 7은 반응 시



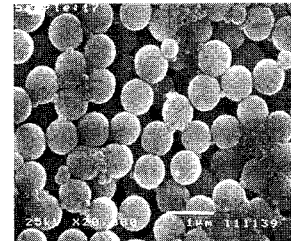
**Figure 7.** Change in particle size with reaction time (1st step: semibatch, 2nd step: batch).



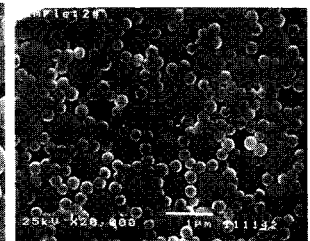
(a)



(c)



(b)



(d)

**Figure 8.** SEM micrograph of particles made at following conditions (1st step: semibatch, 2nd step: semibatch,  $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  0.5 M,  $\text{H}_2\text{O}$  6.0 M,  $\text{NH}_4\text{OH}$  0.7 M): (a) 150 min,  $d = 320$  nm; (b) 350 min,  $d = 378$  nm; (c) 463 min,  $d = 352$  nm; (d) 540 min,  $d = 335$  nm.

간의 변화에 따른 평균 입경의 변화로 180분까지 평균 입경이 빠르게 감소하는 것을 볼 수 있다.

### 3.4. 반회분-반회분의 순서로 실험

Figure 8은 1차 반회분식, 그리고 또 한번의 반회분식 공정으로 반응물을 첨가시켰을 때의 SEM 사진이다. (a)는 첫 번째 반회분식 반응이 종료된 후의 결과로서 평균 입경은 약 320 nm이었다. 이때 TEOS의 가수분해로 생성된 중간 생성물인  $\text{Si}(\text{OH})_4$ 의 농도는 과포화되어 핵이 생성된 후 감소하여 오랜 시간이 경과한 후, 용해도( $C_s$ )에 도달하게 되며 이 시간동안 입자들은 성장하게 된다. 이때 반응물을 다시 소량 첨가하는 또 한번의 반회분식 공정을 적용하게 되면 TEOS의 가수분해 반응이 재차 진행,  $\text{Si}(\text{OH})_4$ 의 농

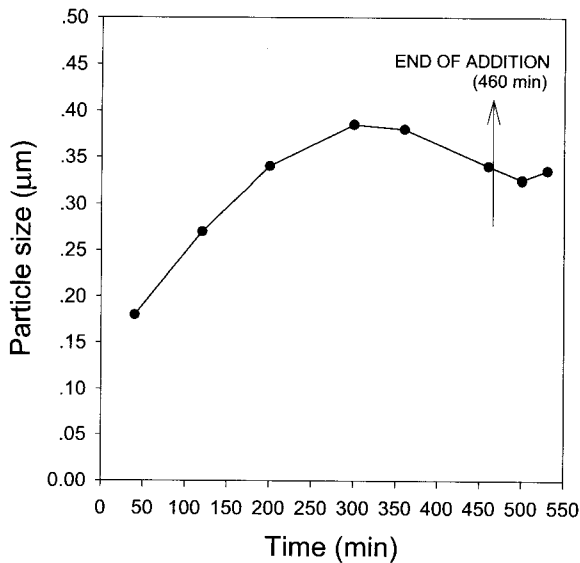


Figure 9. Change in particle size with reaction time (1st step: semibatch, 2nd step: semibatch).

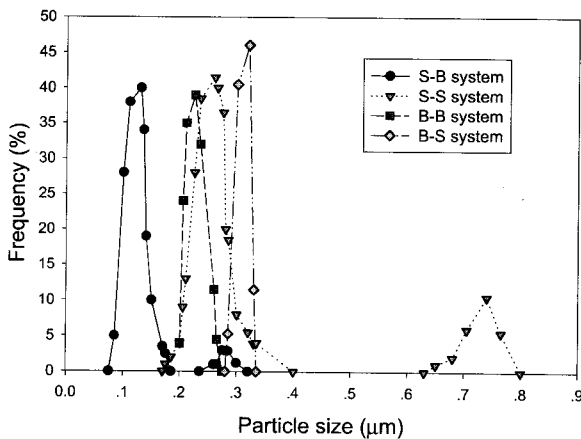


Figure 10. Comparison of the particle size distribution of four type systems.

도가 증가하게 된다. 그 결과 (b)의 사진에서처럼 새로운 2차 핵 생성이 발생하게 된다. 그리고 반응물의 첨가가 종료된 후, 기존에 생성된 입자는 계속 성장하여 2차로 생성된 입자보다 입경이 증가, (c), (d)에서 보듯이 작은 입자들이 성장하여 기존의 큰 입자를 둘러싸고 있는 규칙적인 모습을 보여주고 있다. (c)와 (d)는 반응이 종료된 463, 540분 후의 결과로서 최고 약 680~780 nm에 이르는 입자가 생성되었으며, 최종 평균 입경은 약 335 nm로 다소 감소하는 결과를 보였다. Figure 9는 이러한 결과를 보여주는 반응 시간에 따른 평균 입경의 그래프이다.

3.5. 4가지 혼합 공정에 의해 생성된 실리카 입자의 특징비교

회분-회분, 회분-반회분, 반회분-회분, 반회분-반회분의 네 가지 공정에 대한 전체 입도 분포 그림(Figure 10)에서 보듯이 회분-반회분 > 회분-회분 > 반회분-회분 > 반회분-반회분 공정의 순서로 입도 분포가 가장 양호한 것으로 나타났다. 한편, 반회분-회분과 반회분-반회분 공정의 경우는 두 개의 피크가 나타나는 결과를 보였는데 이러한 결과는 2차 핵 생성으로 인해서 발생한 것으로 사료된다. 2차 핵 생성은 Figure 11의 (c), (d)에서 보듯이 1차를 반

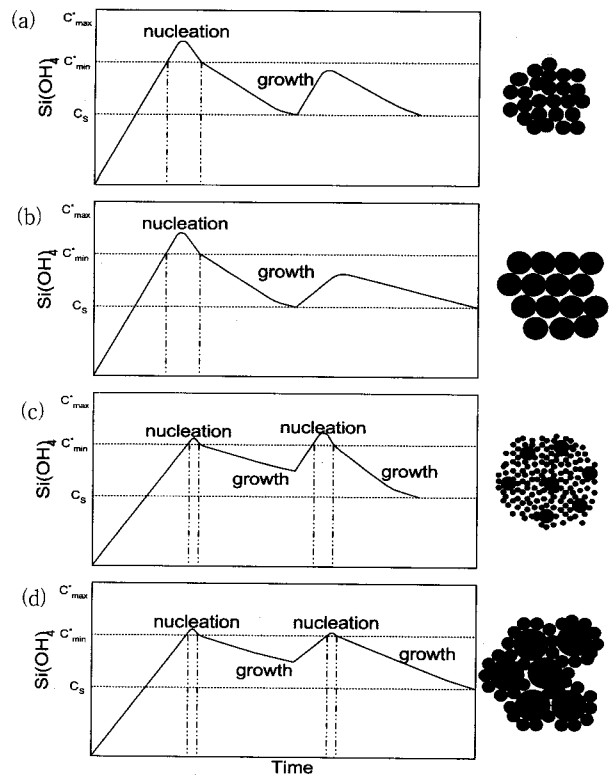


Figure 11. Comparison of the nucleation and growth step of four type systems: (a) batch-batch; (b) batch-semibatch; (c) semibatch-batch; (d) semibatch-semibatch.

Table 2. Comparison of the Properties of Silica Particles Obtained by Using the Four Type Systems

Operating system	Particle size (μm)	Yield (%)	Particle No. density	Particle size distribution	Second nucleation
B-B	0.184	51.0	$2.139 \times 10^{17}$	○	No
B-S	0.263	54.3	$1.517 \times 10^{17}$	◎	No
S-B	0.127	39.1	$2.529 \times 10^{18}$	△	Yes
S-S	0.335	62.1	$8.410 \times 10^{16}$	×	Yes

◎: Excellent, ○: Good, △: Not bad, ×: Bad

회분식으로 반응시킬 경우에만 발생하게 된다. 그 이유는 중간 생성물인 Si(OH)<sub>4</sub>의 가수분해 속도가 느려, 핵이 생성된 후 완전한 기율기로 감소하여 용해도(C<sub>s</sub>)까지 도달하는 시간이 길어지기 때문인데 이때, 회분식이나 반회분식으로 또 한번의 반응이 실시될 경우 Si(OH)<sub>4</sub>의 농도는 다시 증가, 과포화되어 최저 임계과포화 농도(C<sub>min</sub><sup>\*</sup>)와 최대 임계과포화 농도(C<sub>max</sub><sup>\*</sup>) 사이에 도달, 2차 핵 생성이 발생하게 된다. 따라서 기존에 생성되었던 1차 핵들은 계속 성장하고, 2차로 생성된 핵들도 동시에 성장하면서 1차 핵들을 에워싸는 배열 상태를 보이게 된다. 그 반면 (a), (b)와 같은 1차 회분식 공정은 Si(OH)<sub>4</sub>의 과포화로 인한 1차 핵 생성 이후 가수분해 속도가 반회분식 공정 대비 빠르기 때문에 용해도(C<sub>s</sub>)에 빠르게 접근하게 된다. 따라서 그 이후의 회분이나 반회분식의 2차 반응에도 Si(OH)<sub>4</sub>의 농도는 최저 임계과포화 농도(C<sub>min</sub><sup>\*</sup>)에 도달되지 않아 2차 핵 생성은 발생하지 않게 된다. Table 2에 네 가지 공정에서 얻어진 실리카 입자들에 대한 평균 입경, 수율, 수밀도, 그리고

입도분포 등을 요약하였다. 최종 평균 입경의 경우 반회분-반회분 공정의 경우가 가장 컸으며, 수율도 크기에 비례해서 가장 높은 결과를 보였다. 그 반면, 수밀도는 크기에 반비례하여 반회분-반회분 공정이  $8.410 \times 10^{16}$ 개로 가장 적은 결과를 보였다. 한편, 입도 분포는 회분-반회분 공정이 가장 양호하였으며, 2차 핵 생성은 2차 반응 공정의 종류에 관계없이 1차 공정을 반회분식으로 반응시킬 경우에만 발생하였다. 이러한 결과를 모두 종합해 볼 때 입도 분포, 수율, 입자의 치밀화 정도, 그리고 입경 제어 측면에서 회분-반회분 공정이 가장 양호함을 알 수 있었다.

#### 4. 결 론

회분과 반회분의 혼합 공정에 의한 실리카 미립자의 생성에 대한 본 실험 연구 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 평균 입경과 수율의 경우 반회분-반회분 > 회분-반회분 > 회분-회분 > 반회분-회분의 순으로 컸으며, 평균 입경과 수율은 상호 비례하는 결과를 보였다. 이중 반회분-반회분 공정의 경우는 최고 680~780 nm 크기의 입자도 생성되었으며, 또한 반회분-회분 공정의 경우는  $\text{SiO}_2$ 에서  $\text{Si}(\text{OH})_4$ 로의 역반응으로 인하여 입자의 평균 입경이 오히려 감소하는 결과를 보였다.

2) 입도 분포의 경우 회분-반회분 > 회분-회분 > 반회분-회분 > 반회분-반회분의 순으로 양호하였으며, 이중 회분-반회분 공정은 입자의 배열 상태도 가장 조밀한 결과를 보였다.

3) 2차 핵 생성은 2차 반응 공정의 종류에 관계없이 1차 공정을 반회분식으로 실험할 경우에만 발생하였다. 이는 1차 반회분 반응 시  $\text{Si}(\text{OH})_4$ 의 농도가 과포화되어 핵 생성된 후 느린 가수분해 속도로 용해도( $C_s$ )에 접근, 2차 반응 시 빨리 최저 임계과포화 농도

( $C_{\min}^*$ )에 도달하기 때문인 것으로 사료된다.

4) 상기 실험 결과 회분-반회분 공정에 의해서 생성된 입자가 가장 치밀화된 단분산 입자의 결과를, 그리고 수율 및 입경제어 측면에서도 유리한 결과를 보였다.

#### 참 고 문 헌

1. G. H. Bogush, M. A. Tracy, and C. F. Zukoski, *J. Non-Cryst. Solids*, **104**, 95 (1988).
2. G. H. Bogush and C. F. Zukoski, *J. Colloid and Interface Sci.*, **142**, 1 (1991).
3. C. Jeffrey and G. W. Scherer, "Sol-Gel Science", Academic Press, Inc. (1990).
4. W. Stöber, A. Fink, and E. Bohn, *J. Colloid and Interface Sci.*, **26**, 62 (1968).
5. H. S. Fogler, "Elements of Chemical Reaction Engineering", Prentice-Hall (1986).
6. Y. W. Chang and W. S. Kim, *Korean J. Chem. Eng.*, **13**, 5 (1996).
7. E. SADA and H. KUMAZAWA, *The Chem. Eng. J.*, **44**, 133 (1990).
8. V. K. LaMer and R. H. Dinegar, *J. Amer. Chem. Soc.*, **72**, 4847 (1950).
9. E. A. Barringer and H. K. Bowen, *Langmuir*, **1**, 414 (1985).
10. O. Takashi, M. Nobuyasu, and K. Masanori, *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**, 421 (1989).