

분사연소합성(SCS)을 위한 평형종 계산과 용액연소공정

이상진 · 윤준도 · 권혁보 · 전병세[†] · Gary L. Messing*

경남대학교 신소재공학부

*펜실베이니아 주립대학교 재료공학과

(2001년 3월 20일 접수; 2001년 5월 16일 승인)

Calculations of Equilibrium Species and Solution Combustion Process for Spray Combustion Synthesis (SCS)

Sang Jin Lee, Jon Do Yun, Hyok Bo Kwon, Byung Sei Jun[†] and Gary L. Messing*

Division of Advanced Materials Engineering, Kyungnam University, Masan 631-701, Korea

*Department of Materials Science and Engineering, The Pennsylvania State University, University Park, PA 16802, USA

(Received March 20 2001; Accepted May 16, 2001)

초 록

본 연구에서는 분사연소합성(SCS)을 위한 기초단계로서 용액연소합성에 대한 거동을 살펴보고자 알루미늄 합성을 모델로 하였으며 이를 위해 전구체에 대한 열분해거동, 그리고 각 온도에서의 평형종 분압 계산 및 합성과정을 조사하였다. 각각의 열중량 분석(TGA) 결과 산화제와 환원제(연료)의 열분해 이력이 서로 다르게 나타났으며, 열역학 응용 프로그램인 ChemSage에 의한 평형종 분압의 계산에서 연소속도를 저하시킬 수 있는 CO₂와 수증기 가스 분압이 상당부분 존재하였다. 산화제/환원제 혼합물의 열분석(DTA/TG) 결과 산화제와 환원제의 열분해 거동의 차이, 그리고 매우 작은 시료의 양으로 인해 263°C에서 발열 피크가 매우 작게 나타났다. 열분석 시료에 비해 발열 에너지를 높이기 위해 산화제와 환원제 혼합 전구체를 비이커에서 증기 압을 조절하며 가열시켜 본 결과 270°C에서 α -Al₂O₃ 생성물을 얻을 수 있었다. 따라서 분사연소합성 반응을 통해 세라믹 원료를 합성하기 위해서는 연소과정 중 열분해 거동과 평형종의 분압을 고려하여야 한다.

ABSTRACT

In this study, the process of α -alumina synthesis was employed as a model case of the solution combustion synthesis for a fundamental step of spray combustion synthesis (SCS). The thermal decomposition behavior of precursors and the procedures of α -alumina synthesis were investigated, and hence the partial pressures of equilibrium species were also calculated. The thermal decomposition behavior of oxidizer was found different from that of fuel by thermal gravity analysis (TGA). The partial pressures of CO₂ and H₂O which were calculated using ChemSage program were high, which may lower the velocity of combustion. Thermal analysis (DTA/TG) of the mixture of oxidizer and fuel showed a small exothermic peak at 263°C due to the difference between decomposition behavior of fuel and oxidizer, and very small amount of samples. The mixtures of precursors were heated, with controlling vapor pressure, in the beaker to enhance the exothermic energy compared to the samples in thermal analysis equipment, and the synthesis of α -alumina has been achieved at 270°C. The results verify that the thermal decomposition behavior and partial pressure of equilibrium species may be considered for spray combustion synthesis.

Key words : Thermal analysis, Equilibrium species, Solution combustion, α -Al₂O₃, Spray combustion synthesis

1. 서 론

고순도의 산화물과 비산화물계 첨단 세라믹 미분말을 제조하기 위한 여러 가지 화학적 합성방법들이 개발되어 왔다. 그 방법들의 공통된 관심사는 화학 전구체의 분자단위 혼합의 중요성이다. 그러나 분자단위의 혼합만으로는 저온 소결 특성을 갖는 세라믹 분말을 얻기 어렵다. 그 이유중

한가지는 전구체를 선택적으로 가열하거나 하소할 수 없다는 것이다. 이것을 조절하기 위해 레이저 합성법과 분무 열분해법(spray pyrolysis) 등과 같은 여러 가지 방법들이 개발되었지만, 합성할 수 있는 물질의 범위는 매우 제한적인 실정이다. 예를 들면 줄겔 공정의 경우에 금속 알콕시드 화학을 응용하는 것은 금속 알콕시드의 비싼 가격과 열분해 중 탄소 성분을 완전히 제거할 수 없다는 문제점이 있다.

따라서 최근에는 미분의 세라믹 입자를 합성하기 위해 용액의 산화환원반응연소에 의한 자발발열화학반응을 이용하

[†]Corresponding author : bsjun@kyungnam.ac.kr

는 새로운 방법들이 개발되고 있다.¹⁻⁸⁾ 이 방법의 장점은 비교적 저가의 전구체를 사용하고, 오염이 최소화될 수 있으며, 급속한 증석(in-situ) 가열에 의해 단일 산화물, 복합 산화물,⁹⁻¹¹⁾ 금속과 금속산화물의 복합체, 그리고 비산화물과 금속 산화물의 혼합물 등 다양한 범위의 조성을 가지는 균일한 입자들의 제조가 가능하다는 것이다.

이러한 이유로 인해 Patil과 Kingsley^{1,2)} 등은 금속 질산염, 그리고 하이드라진으로부터 파생된 여러 종류의 연료 및 글리신을 출발물질로 하여 용액연소 반응에 의해 다양한 종류의 산화물 세라믹 분말을 합성하였는데, 이 방법은 거품 형태의 벌크가 얻어지기 때문에 미분체 제조를 위해 분쇄 공정이 필요하고, 그로 인해 원하지 않는 입자 형상이나 불순물이 얻어진다.

따라서 고순도의 초미세 입자를 제조하기 위해 Gallagher 등³⁾과 Stangle 등^{4,5)}은 분무건조기에서 직접 분말을 합성하려고 시도하였으나 연소반응이 제한적이었다. 이와 같은 문제를 해결하기 위하여 Aksay 등⁶⁾은 세라믹 전구체 혼합물로부터 액적을 제조하고, 충분히 용매를 제거하여 건조 입자를 형성한 다음, 반응을 열적으로 촉진시켜 분말 합성을 시도하였으나, 반응기 내에서 액적의 체류시간이 너무 길어 입자응집 현상 때문에 초미세 입자 제조에 어려움이 있었다. 따라서 Helble 등⁷⁾은 증기 상에서 핵생성을 조절함으로써 마이크로미터 크기 이하의 입자를 제조할 수 있는 공정을 개발하여 반응기 내 액적의 체류시간은 0.1초에서 3.1초 사이로 짧아졌지만, 반응이 완결되지 않아 역시 하소 공정을 분리하여 실시하였다. 이러한 분리하소공정을 피하기 위하여 Maupin 등⁸⁾은 연속 흐름 반응기를 고안하였는데, 이 반응기는 실린더 반응로로서 운반가스가 용기 내로 진입하여 운반될 때 흐름방향이 내부 면의 탄젠트 방향으로 회전하여 돌아가므로 당연히 체류시간이 길어 입자의 응집이 발생하며, 하소하기에 온도가 너무 높다는 단점이 있다.

이와 같이 용액을 액적의 형태로 제조, 분무하여 낮은 온도에서 증석가열 방법으로 직접 분말을 합성하려는 시도는 연소반응속도를 저하시킬 수 있는 수증기 및 CO₂ 가스 분압과 같은 문제로 인해 반응이 제한적이어서 하소 공정을 따로 분리하는 등 나노규모의 미분체 제조에는 문제가 많이 발생하였다. 따라서 이러한 문제점들을 해결하기 위해서는 용액연소과정에 대한 정확한 이해가 필요하다.

일반적으로 산화환원에 의한 화학반응의 발열성은 생성물의 자유에너지와 직접적인 함수관계를 가지므로 화학 열역학적으로 계산되고, 또한 적절한 반응물의 선택으로 인해 발열성이 조절될 수 있다. 추진제로서 높은 에너지를 발생시키는데 필요한 화학양론 조성은 산화제와 환원제(연료)의 혼합비율을 이용해서 계산되며, 최대 에너지는 산화수와 환원수의 비가 1이 되는 경우 얻어진다^{1,2)}고 알려져 있다.

그러나 실제 용액연소반응에서 산화제와 연료의 산화수/환원수의 비가 1이 된다 하더라도 각 전구체의 열분해 거

동이 상이할 수 있기 때문에 연소반응 정도는 연료와 산화제의 열분해 속도를 살펴보아야 할 필요가 있다.

본 연구에서는 분사연소합성을 위한 기초단계로서 용액연소합성에 대한 거동을 살펴보고자 가장 연구가 많이 진행되어 있는 알루미늄 합성과정을 대상으로 하였고, 합성하기 위한 전구체의 열적 분해거동을 관찰하였으며, 각 온도에서 평형종과 분압을 계산하였고, 그리고 α-Al₂O₃ 합성과정을 조사하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서는 용액 연소법에 의해 단일 산화물인 α-Al₂O₃가 합성되는 동안의 열분해 거동을 조사하기 위하여, 산화제 전구체인 Aldrich chemical사의 알루미늄 질산염 (Al(NO₃)₃ · 9H₂O)과 환원제 전구체인 Acros organic사의 Carbohydrazide(CH₆N₄O)를 원료로 사용하였다. 열분해 반응거동을 살펴보기 위하여 각각의 원료와 혼합물에 대하여 시차 열중량 분석기(SDT 2960, TA Instruments, USA)를 이용하여 열분석을 행하였으며, 열역학 응용 프로그램인 ChemSage(Version 4.1, GTT's Technical Thermochemistry, USA)를 운용하여 연소과정에서 발생하는 평형종과 분압을 계산하였다. 그리고 열분석 결과를 토대로 Fig. 1과 같이 산화제와 환원제를 혼합하여 반응시킨 후, 주사전자 현미경과 투과전자현미경, 그리고 엑스선 회절분석기를 사용하여 용액 연소반응에 의한 생성물의 특성을 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 열분석 및 평형종과 분압 계산

추진제 화학(propellant chemistry) 분야에서는 산화제와 연료 혼합물의 화학양론비가 연소반응 중 열에너지를 제어한다는 것은 이미 알려져 있다. 일반적으로 사용되는 산화제는 NH₄ClO₄ 또는 ammonium nitrate이며, 연료는 polymeric amides, esters, hydrazides, 그리고 nitrocellulose이다.

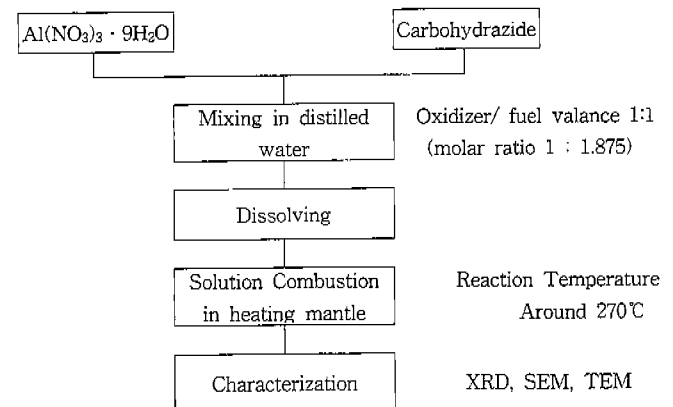


Fig. 1. Schematic diagram of solution combustion process.

추진제로서 높은 에너지를 발생시키는데 필요한 화학양론 조성은 산화제와 연료의 혼합비율을 이용해서 계산되며, 최대 에너지는 산화수와 환원수의 비가 1이 되는 경우 얻어진다.^{1,2)}고 알려져 있다.

그러나 서론에서 밝힌 바와 같이 전구체를 액적의 형태로 분무하여 분말 합성을 시도한 여러 가지 방법에서는 연소합성 반응이 완결되지 않아 공통적으로 하소과정을 거쳐야 한다. 이와 같은 현상은 산화제/환원제에 대한 전구체의 열분해 거동과 연소반응을 일으키기 위한 평형종을 고려하지 않고 합성한 결과이다.

따라서 본 연구에서는 산화제와 환원제, 그리고 산화제/환원제 혼합물에 대한 열분해 거동을 조사하고 평형종과 분압을 계산하였다. 산화제로 사용한 알루미늄 질산염의 열중량 분석 결과 Fig. 2에 나타난 바와 같이 온도 증가에 따른

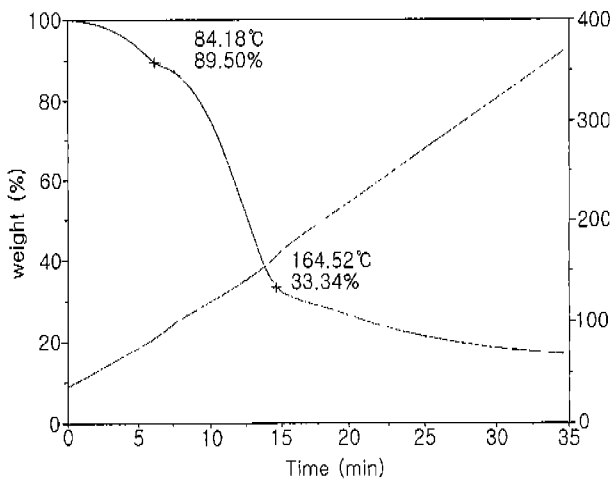


Fig. 2. The TGA data of the oxidizer during heating.

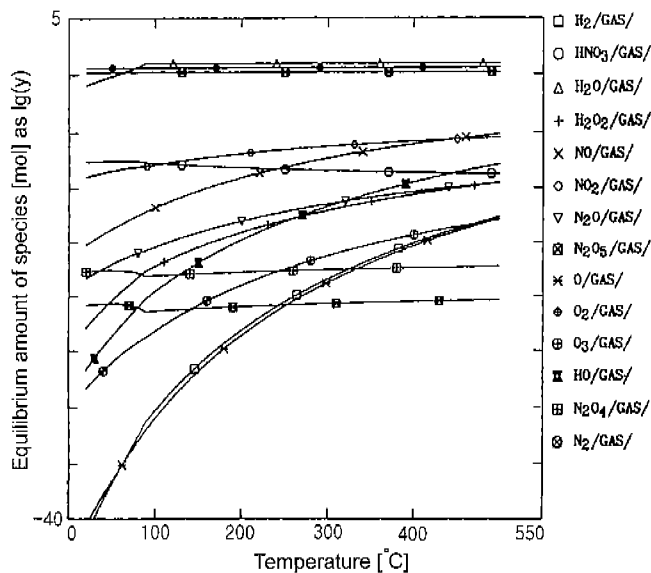


Fig. 3. Phase equilibrium calculation of oxidizer during heating.

중량감소 변화가 84°C와 164°C 사이에서 지배적으로 일어나고 있으며, 열역학 응용 프로그램인 ChemSage를 이용하여 평형 분압을 계산한 결과 Fig. 3과 같다. 이 온도범위에서 발생하는 가스들의 종류는 H₂O, O₂, N₂, NO₂, NO, N₂O, N₂O₄, HO, H₂O₂ 그리고 HNO₃이다. 이들 성분들은 어떤 특정한 온도범위에서 생성되고, 서로가 가역적이거나 비가역적인 기상반응을 한다.

이 중에서 NO+½O₂=NO₂ 반응의 평형은 온도에 크게 의존한다. 또한 최고 227°C까지는 NO₂가 지배적이고, 그 이상의 온도에서는 양이 비슷해진다 그리고 NO₂=½N₂+O₂와 2NO=O₂+N₂ 반응은 727°C 이하에서 매우 느리다고 알려져 있다.¹²⁾ N₂와 O₂는 NO와 NO₂에 비해서 매우 안정하기 때문에 염이 분해되는 동안에 N₂가 생성되면 반응은 더 이상 일어나지 않을 것이다. 일반적으로 금속의 아질산염은 질산염에 비해 훨씬 덜 안정하며, 질산염이 분해되는 동안 불안정한 중간 상으로 나타난다.

환원제로 사용한 Carbohydrazide의 열중량 분석 결과 Fig. 4와 같다. 산화제인 알루미늄 질산염에 비해 높은 온도에서 분해가 일어나기 시작하여 온도 증가에 따라 반응이 지속되는 것으로 나타났으며, 열분해에 의한 중량 감소 변화는 180°C에서 352°C 사이의 온도범위에서 약 95% 정도 감소되었다. 이 때 발생하는 중요한 성분들은 ChemSage 프로그램의 계산 결과에 의하면 Fig. 5와 같이 N₂, H₂O, CH₄, H₃N, H₂, CO, C₂H₆, C₄H₈, CH₄O, CHN, C₂H₄, CH₂O 그리고 CO₂ 등이 지배적인 것을 알 수 있었다.

이상과 같은 각각의 열분석 결과에서 알 수 있듯이 산화제의 열분해는 약 165°C에서 이미 완결이 되었으며, 연료는 약 180°C 부근에서 반응이 시작되고 있으므로, 실제 용액연소 합성의 경우 산화제가 열분해 되어 발생하는 기체상의 분자나 기(radicals)들은 연료로부터 분해되는 기체 상들과 충돌하기 전에 이미 상당부분 외부로 빠져나가게 된다. 그 결과 산화환원 반응에 참여하는 기체 상들의 산화수와 환원

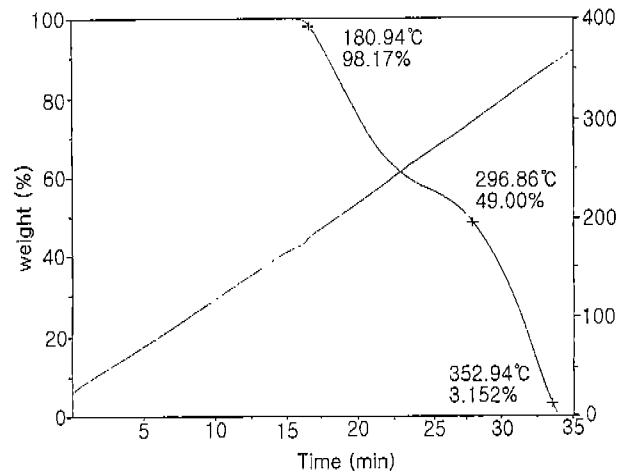


Fig. 4. The TGA data of the fuel during heating.

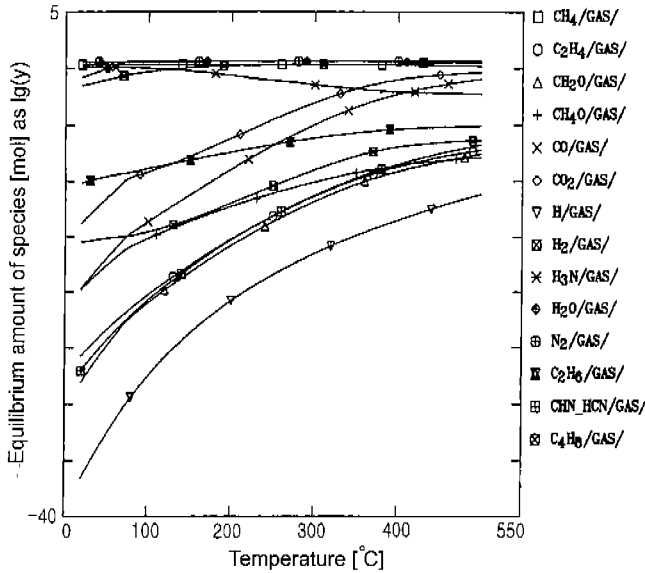


Fig. 5. Phase equilibrium calculation for fuel decomposition during heating.

수의 비가 1이 될 만큼 충분하지 못하게 되므로, 완전한 연소합성반응을 기대할 수 없다. 즉, 산화제와 연료 각각의 열분해 거동에서 분해되는 온도가 서로 다르기 때문에 반응기 내부가 닫힌 계가 아닐 경우 연소반응의 구동력이 되는 분자나 기들의 충돌에 의한 산화환원 반응이 충분히 일어나지 못할 것으로 생각된다. 또한 ChemSage 프로그램에 의한 평형종과 분압 계산에서 CO₂와 수증기 가스 분압이 상당부분 존재하는 것으로 나타났다. 연소반응 중 연료와 산화제로부터 발생된 각종 분자나 기와 같은 활성화된 중간 생성물들이 이미 생성된 H₂O, CO₂와 같은 증기와 표면 반응을 하여 활성화된 분자나 기들이 소멸되고, 발열된 열이 열전도에 의해 방사되어 반응계 내부의 온도가 내려가 연소속도가 저하될 수 있다.¹³⁾

따라서 실제로 용액연소 반응에서 나타나는 거동을 조사하기 위해 산화제와 환원제를 혼합하여 열분석(DTA/TG)을 행한 결과를 Fig. 6에 나타내었다.

이 결과에서 전체 반응은 100°C 이하에서부터 중량감소가 나타나기 시작하여 127°C부터 186°C 사이에서 23%의 중량감소를 보이는데, 이것은 Fig. 2에서 보는 바와 같이 산화제의 열분해가 일어나기 때문인 것으로 생각된다. 그리고 186°C에서 263°C 사이에서 나타나는 중량감소는 Fig. 2와 Fig. 4에서 보는 바와 같이 잔류하고 있는 산화제의 열분해가 지속되고 환원제의 열분해 반응이 일어나는 것을 의미한다.

열분해 반응이 지속되는 동안 263°C에서 발열반응이 일어나 수초 동안에 약 37%의 중량감소가 일어났는데, 이것은 산화제와 환원제에서 발생하는 가스 상의 분자나 기들이 서로 충돌하여 산화 환원 반응을 하기 때문인 것으로 생각

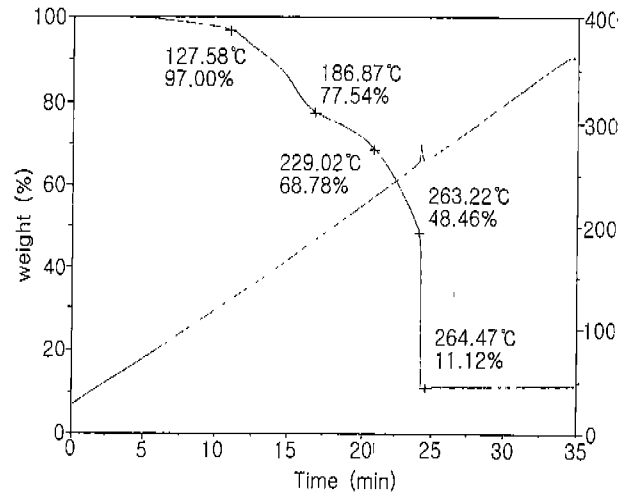


Fig. 6. The DTA/TG data of the oxidizer/fuel mixture during heating.

된다. 발열 피크가 작게 나타난 것은 Fig. 2에서와 같이 약 160°C 이하에서 산화제로부터 열분해 되어 나오는 기체 상의 분자나 기들의 상당량이 외부로 빠져나가 산화 환원 반응에 참여하지 못하고, 환원제의 경우 Fig. 4에서 보는 바와 같이 263°C 부근에서는 50% 정도만의 열분해가 일어나므로, 연소 반응에 참여하는 분자나 기들이 충분하지 않기 때문인 것으로 생각된다.

이와 같은 결과에서 알 수 있는 것은 용액의 연소합성을 위한 에너지를 최대로 얻기 위해 산화수와 환원수의 비를 1로 조절하더라도, 산화제와 연료의 열분해 이력이 서로 다르기 때문에 분해되어 나오는 분자나 기들이 충돌에 의한 산화환원반응의 기회를 충분히 갖지 못하게 되며, 또한 CO₂와 수증기 가스 분압의 증가로 인해 연소반응 속도가 저하되기 때문에 충분한 반응이 일어나지 못하게 된다.

따라서 실제 전구체 용액을 이용한 연소합성 실험에서는 추진제 화학의 이론과는 달리 낮은 온도에서 연소합성에 필요한 산화환원 반응의 최대 에너지를 얻지 못하므로 완전한 연소반응을 일으키는 것이 어렵기 때문에, 하소공정에 의한 부가적인 에너지가 주어져야만 완전한 결정상을 갖는 생성물이 제조되는 것으로 생각된다.

그러므로 하소공정을 거치지 않고 낮은 온도에서 연소합성반응이 완결되기 위해서는 연소과정에서 나타날 수 있는 평형종의 분압을 고려해서 전구체를 선택하고, 열분해 속도를 조절해야하며, 연소반응에 의해 상변태가 가능한 충분한 에너지를 가질 수 있도록 하여야 한다.

3.2. 용액연소 반응

열분석 결과에서 나타난 바와 같이 산화제와 연료 각각의 열분해 이력이 서로 다르고 연소반응을 조사하기 위한 열분석 시료가 너무 적어 263°C 부근에서 발생한 발열량 피크

가 작게 나타났다. 이러한 상태에서 연소반응 생성물이 안정한 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 로 상변태를 하였는지에 관해서는 의심할 여지가 많다. 따라서 본 연구에서는 산화제/환원제 전구체를 500 ml 비이커에 많이 넣고 연소반응을 시켰을 때, 이 연소반응을 시작시키기 위한 공정을 열분석 결과와 비교하여 검토하여 관찰하였으며, 연소 반응 후 생성된 알루미늄의 결정과 크기를 조사하고자 하였다.

산화제와 환원제의 열분석 결과 Fig. 2와 Fig. 4에서 보는 바와 같이 열분해 속도가 다르기 때문에 실험적으로 용액 연소 과정에서 산화제와 환원제의 분해 속도 차를 최대한 관찰하기 위하여 비이커 뚜껑을 연 상태로 산화제/환원제 전구체 혼합물의 반응이 시작될 때까지 승온 하였고, 그리고 뚜껑을 닫아서 온도를 승온시켜 산화제/환원제 전구체 혼합물로부터 나온 분자나 기체가 비이커 내에 잔류하여 연소반응을 일으킬 수 있도록 환경을 조성하였다.

대기압 하에서 열분해 속도를 제어하기 위해 비이커의 뚜껑을 덮은 것은 완전히 밀폐시키지 않고 조금 열어 놓았으며, 그리고 덮지 않은 것도 동일한 승온 속도로 500°C 까지 가열하였으며, 이 때 산화제인 알루미늄 질산염과 환원제인 Carbohydrazide의 화학양론적 조성비는 각 성분들의 산화수와 환원수를 계산하여 그 비율이 1:1이 되도록 조절하였다.

산화제/환원제 혼합물의 가열과정에서 뚜껑을 덮지 않은 비이커의 경우 100°C 이상에서부터 기체 상들이 생성되기 시작하였으나 500°C까지 전혀 연소반응이 일어나지 않았다. 이것은 온도가 증가함에 따라 산화제와 환원제로부터 기체 상의 분자나 기체가 분해하여 공기 중으로 빠져나가 연소반응을 개시하지 못하게 되었기 때문으로 생각된다. 그러나 열분해 속도를 제어하기 위해 뚜껑을 덮은 비이커의 경우 가열에 의해 100°C 부근에서부터 가스가 생성되기 시작하였으며 비이커 표면에 수증기가 증착되었다. 이러한 수증기는 용매로 사용한 증류수가 증발하면서 생성되는 것으로 생각된다. 그리고 온도증가에 따라 계속해서 기체 상들이 생성되다가 약 170°C 부근에서 용액이 끓어올라 190°C부터 거품이 생기기 시작하였다. 200°C 이상에서 용액 전체가 gel 상의 거품형태를 이루면서 부풀어오르다가, Fig. 6의 산화제와 연료 혼합물의 DTA 분석 결과에서 나타나는 발열반응 피크가 나타나는 온도(263°C)와 유사하게 약 270°C에서 노란색 불꽃이 형성되어 수초간 격렬한 연소반응이 일어나 Fig. 7의 엑스선 회절 분석에 나타낸 바와 같이 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 로 완전한 상변태를 이루었다. 이와 같은 반응은 연속적으로 일어난 것이며, 전체 반응이 완결되는데 소요된 시간은 15분이 채 못되었다.

생성물의 구조는 Fig. 8의 전자 현미경 사진(a)과 투과 전자현미경 사진(b)에서와 같이 100 nm 크기의 알루미늄 입자들이 네트워크 연결되어 있음을 알 수 있는데, 이것은 gel 상의 생성으로 인해 분해되어 나온 분자나 기체가 빠져나가

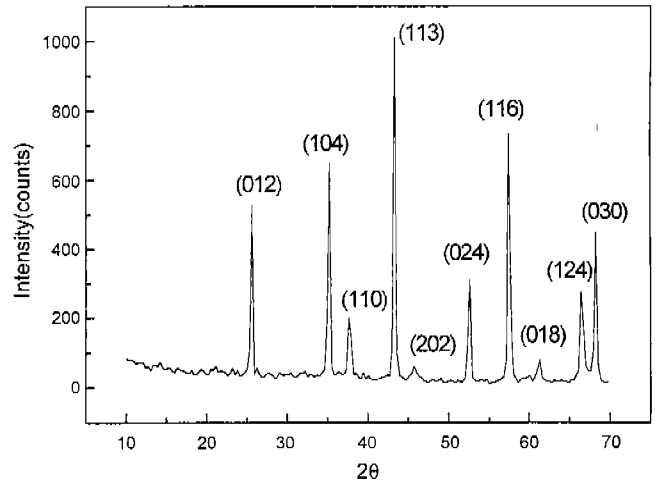
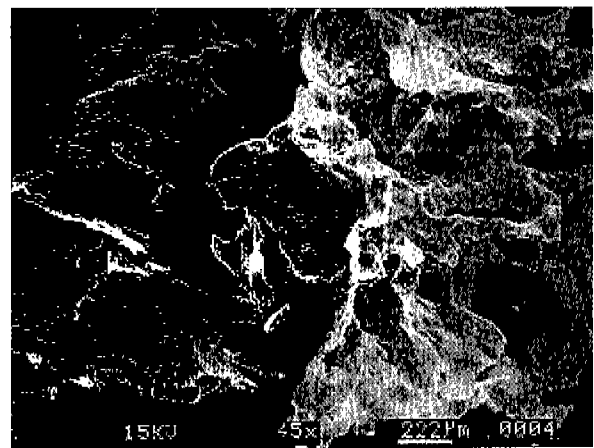


Fig. 7. The XRD pattern of the synthesized product by solution combustion.



(a)



(b)

Fig. 8. The morphology of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ product by solution combustion: (a) SEM and (b) TEM.

지 못하고 용액 전체에 걸쳐 연소반응이 전파되었다는 것을 의미하며, 그 결과 약 270°C에서 반응이 완결될 수 있었던 것으로 생각된다.

생성물의 결정 크기(crystalline size)를 알아보기 위하여 line broadening에 의한 엑스선 회절 피크에서 반가폭을 측정하여 Scherrer의 식에 적용해서 계산한 결과 약 80 nm의 결정 크기를 가지는 것으로 나타났다.

이와 같은 결과에서 알 수 있듯이 용액연소반응에서 세라믹 입자를 제조하기 위해서는 산화제/환원제의 열분해 속도를 고려하여 산화환원 반응이 일어날 수 있도록 연소공정을 제어해야 할 것으로 생각된다.

4. 결 론

1. 열중량 분석(TGA) 결과에서 산화제와 연료의 열분해 이력이 서로 다르게 나타났으며, 평형종의 계산에서 연소속도를 저하시킬 수 있는 CO₂와 수증기 가스 분압이 상당부분 존재하는 것으로 나타났다.

2. 산화제/환원제 혼합물의 열분석(DTA/TG) 결과에서 263°C 부근에서 발열반응이 매우 작게 나타났는데, 이것은 산화제로부터 열분해 되어 나오는 기체 상의 분자나 기체의 상당량이 외부로 빠져나가 산화 환원 반응에 참여하지 못하고, 환원제의 경우 263°C 부근에서는 50% 정도만의 열분해가 일어나므로, 연소 반응에 참여하는 분자나 기체가 충분하지 않기 때문인 것으로 생각된다.

3. 산화제/환원제의 전구체 혼합물을 비이커 단위로 연소반응을 시킨 결과 비이커 뚜껑을 연 경우에는 반응이 일어나지 않았고, 뚜껑을 닫은 경우에는 약 270°C에서 급격한 연소반응이 일어나 100 nm 크기의 입자들이 네크로 연결되어 있는 α-Al₂O₃ 생성물을 얻을 수 있었다.

이와 같이 용액의 연소합성을 위한 산화제와 연료의 열분해 이력이 서로 다르기 때문에 분해되어 나오는 분자나 기체가 연소반응의 기회를 충분히 갖지 못하게 되며, 또한 CO₂와 수증기 가스 분압이 연소반응 속도를 저하시켜 반응이 제한적으로 일어난다.

그러므로 용액연소합성 반응을 통해 즉석 가열 방법으로 초미분의 세라믹 원료를 합성하기 위해서는 산화제와 환원제의 열분해 속도를 고려하여 전구체를 선택하여야 한다. 또한 연소 과정 중 발생하는 평형종을 고려하여 반응을 제어해야 할 것으로 생각되며, 향후 분사연소 합성공정(SCS)을 위한 중요한 기초 데이터로 활용될 것으로 기대한다.

감사의 글

본 연구 과정은 2000년도 경남대학교 학술연구비 지원에 의해 이루어 졌으며, 이에 감사 드립니다.

REFERENCES

1. J. J. Kingsley and K. C. Patil, "A Novel Combustion Process for the Synthesis of Fine Particle Alpha Alumina and Related Oxide Materials," *Mater. Letters*, **6**, 426-432 (1988).
2. J. J. Kingsley and L. R. Pederson, "Combustion Synthesis of Perovskite LnCrO₃ Powder using Ammonium Dichromate," *Mater. Letters*, **18**, 89-96 (1993).
3. K. Kourtakis, M. Robbins, G. W. Kammlott, V. G. Lambrecht, Jr. and P. K. Gallagher, "In Situ Reaction via Self-propagating Chemical Decomposition," pp. 209-216 in *Ceramic Trans.*, Vol. 12, The American Ceramic Society, Wasterville, OH, 1990.
4. Y. Zhang and G. C. Stangle, "Preparation of Fine Multi-component Oxide Ceramic Powder by a Combustion Synthesis Process," *J. Mater. Res.*, **9**(8), 1997-2004 (1994).
5. K. R. Venkatachari, D. Huang, S. P. Ostrander, W. A. Schulze and G. C. Stangle, "A Combustion Synthesis Process for Synthesizing Nano Crystalline Zirconia Powders," *J. Mater. Res.*, **10**(3), 748-755 (1995).
6. I. A. Aksay *et al.*, "Ceramic Precursor Mixture and Technique for Converting the Same to Ceramic," United States Patent No. 5,061,682 (1991).
7. J. J. Helble *et al.*, "Process for Producing Nano-scale Ceramic Powders," United States Patent No. 5,258,695 (1994).
8. G. D. Maupin *et al.*, "Combustion Synthesis Continuous Flow Reactor," United States Patent No. 5,705,132 (1998).
9. D. J. Kim and H. Kim, "Synthesis of TiO₂ and BaTiO₃ Powders by Spray Pyrolysis Method," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **26**(5), 691-697 (1989).
10. J. H. Lee, B. H. Kim, E. S. Choi and J. S. Hwang, "Y-TZP Fine Powder Preparation by Ultrasonic Spray Pyrolysis," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **30**(4), 325-331 (1993).
11. S. Y. Cho, J. H. Lee, M. C. Kim and S. J. Park, "Preparation of Spherical (Zr,Sn)TiO₄ Powders by Ultrasonic Spray Pyrolysis," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **31**(5), 465-470 (1989).
12. R. R. Ciminelli, "Synthesis of Alumina from Al(NO₃)₃·9H₂O by the Evaporative Decomposition of Solution Process," A Thesis of Master in Ceramic Science, Penn State Univ., U.S.A., 1983.
13. J. Warnatt, U. Maas and R. W. Dibble, *Combustion*, printed by Springer-Verlag Heidelberg New York, 1996.