

마이크로파 가열에 의하여 합성된 알루미나 입자의 특성

김성완 · 이성환 · 박재현 · 김준호* · 박성수* · 박희찬[†]

부산대학교 무기재료공학과

*부경대학교 화학공학부

(2002년 8월 22일 접수; 2002년 9월 26일 승인)

Characteristics of Alumina Particles Synthesized by Microwave Heating

Sung Wan Kim, Sung Hwan Lee, Jae Hyun Park, Jun Ho Kim*, Seong Soo Park* and Hee Chan Park[†]

Department of Inorganic Materials Engineering, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea

*Division of Chemical Engineering, Pukyong National University, Pusan 608-739, Korea

(Received August 22, 2002; Accepted September 26, 2002)

초 록

마이크로파 가열을 이용하여 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 와 Na_2SO_4 분말 혼합물로부터 알파 알루미나 판상체 입자를 합성하였다. 마이크로파를 이용하여 합성된 알루미나 입자의 크기와 입자분포를 마이크로파 이용 없이 동일한 혼합물로부터 합성된 분말과 비교하였다. 마이크로파를 이용하여 합성된 시료는 마이크로파 사용 없이 합성된 시료에 비하여 입자크기가 작고 입자분포가 좁음을 알 수 있었다.

ABSTRACT

Alpha alumina platelet particles were synthesized from the powder mixtures of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ and Na_2SO_4 with the use of microwave heating. The characteristics of the particles such as particle size and particle size distribution were compared with those of particles obtained from the same mixture without the use of microwave. Sample with the use of microwave showed small particle size and narrow particle size distribution compared to that without the use of microwave.

Key words : Microwave heating, Particle size, Particle size distribution, Alumina

1. 서 론

알루미나 분말은 금속 또는 세라믹 재료의 연성 및 강도 등 기계적 성질을 향상시키기 위하여 보강제로 응용되고 있다.^{1,2)} 또한 알루미나는 열전도도가 유기물에 비하여 높으므로 열 방출을 요구하는 고분자 전자재료의 열전도성 향상을 위한 첨가제로 사용된다.^{3,4)} 세라믹 분말 합성 방법 중 flux법이 있는데 이 방법은 flux로 NaCl, KCl, K_2SO_4 및 Na_2SO_4 등을 사용한다.^{5,6)} Hashimoto와 Yamaguchi^{7,8)}는 K_2SO_4 와 Na_2SO_4 를 flux로 사용해서 $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ 또는 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 로부터 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체(platelet)를 합성하는데 성공하였다. 박성수 등⁹⁾은 Hashimoto⁸⁾와 동일한 방법으로 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체를 합성하는데 마이크로파를 적용하여 보았다. 그러나 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체의 입자크기와 입자분포에 미치는 마이크로파의 영향에 대한 연구는 상

세히 하지 않았다. 마이크로파는 재료 내부에 침투(penetration)하여 부피가열, 급속가열 및 선택적 가열을 하는 특성이 있다.¹⁰⁻¹²⁾

본 연구는 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 와 Na_2SO_4 flux 혼합물에 마이크로파 가열(microwave heating)을 하여 얻어지는 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체 입자의 크기와 입자분포 특성을 조사하는데 목적이 있다.

2. 실험방법

출발물질로 본 실험실에서 합성한 $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 14\text{-}18 \text{H}_2\text{O}$ ^{13,14)}(순도 98%)를 열처리하여 얻어진 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 분말과 Na_2SO_4 (Yakuri Pure Chemical Co., 99%)분말을 사용하였다.⁷⁾ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 와 flux로 사용되는 Na_2SO_4 를 주어진 몰비($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 : \text{Na}_2\text{SO}_4=1:1\sim 1:6$)로 칭량하여 아세톤 내에서 균일한 혼합시료를 제조하였다. 이 시료 10g 취한 후 알루미나 도가니에 넣고 알루미나 덮개(lid)로 밀폐하였다. 밀폐된 도가니를 전기로(SEF-101, Shin Saeng Instrument Co.)와 마이크로파 가열장치(Hankuk Microwave Instrument Co., 주파수 2.45 GHz, 가변 최대 출력 3 kW)내에 각기 넣은

[†]Corresponding author : Hee Chan Park
E-mail : hcpark2@hyowon.pusan.ac.kr
Tel : +82-51-510-2388 Fax : +82-51-512-0528

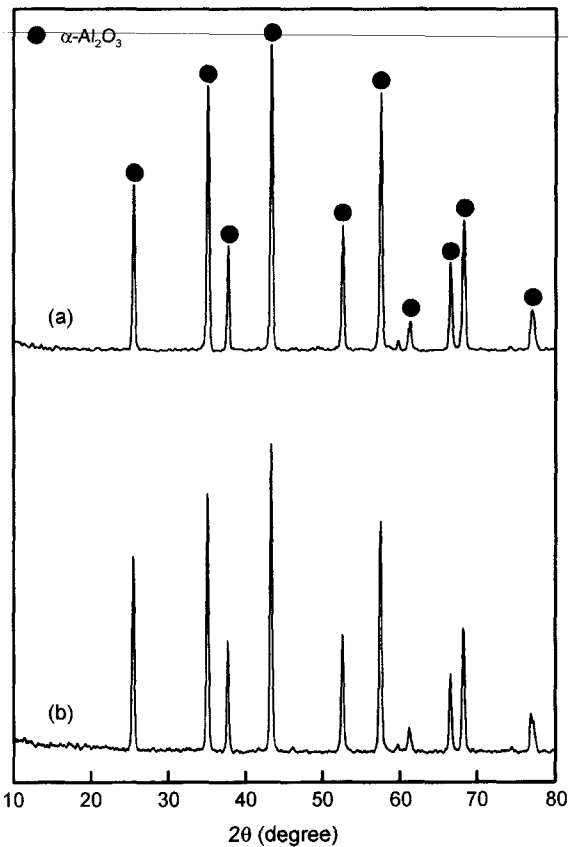


Fig. 1. XRD patterns of samples obtained by (a) conventional heating and (b) microwave heating the mixture of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + 6\text{Na}_2\text{SO}_4$ at 1100°C for 1 h.

후 1100°C 에서 1시간 동안 열처리하고 실온으로 로냉하였다. 냉각된 시료에 잔존하는 flux성분을 제거하기 위해 시료를 1N HCl 수용액 내에서 80°C , 1시간 동안 방치 후 증류수로 여러 번 세척하였다. 이 세척된 시료를 건조하여 최종 분말시료로 하였다. 시료의 결정 상 분석을 위하여 X-선 회절장치(RINT 2000, Rigaku Co., Japan)를 사용하였으며, 분말의 입자크기 및 형태를 SEM(JSM-5400, JEOL Co., Japan)으로 관찰하였다. 시료의 입도 분포는 입도분석기, PSA(Mastersizer Microplus, Malvern Instruments Ltd.)를 이용하여 측정하였다. 여기서, 입자크기와 분포는 5개의 시료에 대한 평균값으로 하였다.

3. 실험결과 및 고찰

$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 : \text{Na}_2\text{SO}_4$ 의 몰비가 1 : 1에서부터 1 : 6까지 되도록 조합한 혼합분말 시료를 1100°C 에서 1시간 동안 재래식 열원(일반 전기로에 의한 열원)과 마이크로파 열원으로 각각 가열하여 얻어진 최종 합성물 시료는 모두 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 의 육각판상체(hexagonal platelets)로 나타났다. 일 예

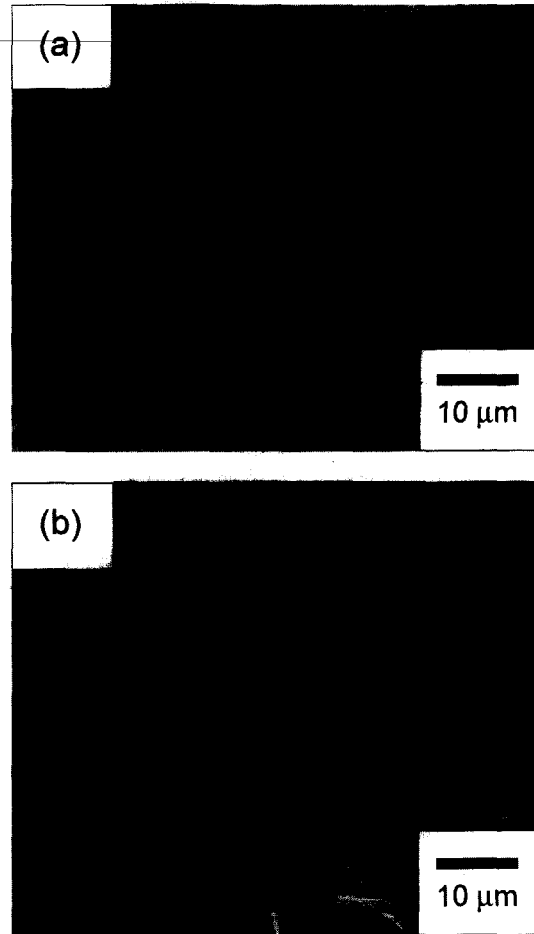


Fig. 2. SEM micrographs of samples obtained by (a) conventional heating and (b) microwave heating the mixture of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + 6\text{Na}_2\text{SO}_4$ at 1100°C for 1 h.

Table 1. Average Size of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ Platelets Obtained by Conventional Heating and Microwave Heating the Mixture of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{Na}_2\text{SO}_4$ at 1100°C for 1 h

x mol in $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + x\text{Na}_2\text{SO}_4$	Average size (μm) by conventional heating	Average size (μm) by microwave heating
1	3.22	2.15
2	7.73	4.59
3	8.45	5.52
4	9.15	5.92
5	9.63	6.56
6	10.2	7.59

로, Figs. 1과 2는 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + 6\text{Na}_2\text{SO}_4$ 분말혼합물로부터 합성된 X-선 회절도와 SEM 사진이다. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 상과 육각 판상체를 보이고 있다. Table 1은 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + x\text{Na}_2\text{SO}_4$ ($x=1 \sim 6$)의 분말 혼합물을 재래식 열원과 마이크로파 열원으로 가열하여 얻어진 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체의 평균 입자 크기를

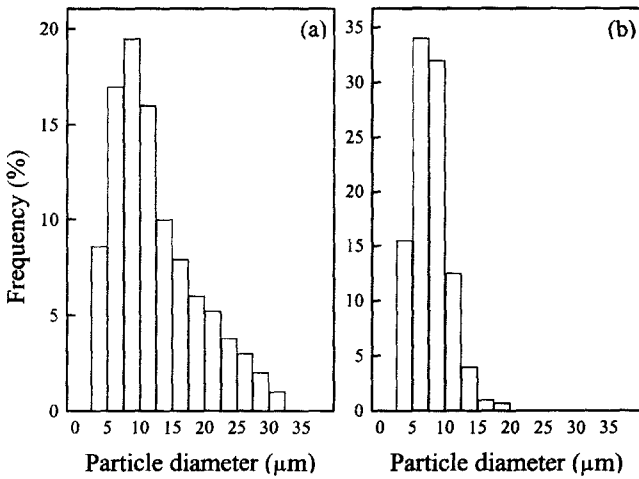


Fig. 3. Particle size distribution of samples obtained by (a) conventional heating and (b) microwave heating the mixture of $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + 6\text{Na}_2\text{SO}_4$ at 1100°C for 1 h.

보이고 있다. Na_2SO_4 의 몰비가 증가함에 따라 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체 입자의 크기가 증가함을 알 수 있다. Na_2SO_4 flux 양의 증가에 따른 입자 크기의 증가는 용액-석출반응 (solution-precipitation reaction)에서 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체 석출을 위한 액상의 증가로 생각된다.⁸⁾ 또한, Table 1에서 재래식 가열에 비하여 마이크로파가열 조건하에서 입자의 크기가 상대적으로 작음을 보이고 있다. 이러한 입자크기 차이는 마이크로파 에너지에 의한 용액-석출반응 속도 차에 기인된 것으로 생각되지만 앞으로 더 깊은 연구가 요구된다. 재래식과 마이크로파로 가열된 시료의 입도 분포를 비교하기 위하여 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + 6\text{Na}_2\text{SO}_4$ 혼합 분말시료를 1100°C 에서 1시간 동안 마이크로파와 재래식 열원으로 각각 가열하여 얻어진 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체 입자의 입도 분포를 Fig. 3에 나타내었다. 재래식으로 가열된 시료에 비하여 마이크로파로 가열된 시료의 입도 분포가 좁음을 알 수 있다. 이러한 차이는 재래식 가열과 마이크로파 가열 특성¹⁵⁻¹⁷⁾에 기인한 것으로 생각된다. 마이크로파에 의한 에너지 전환은 다음 식과 같이 재료의 복소 유전상수가 중요한 인자로 작용한다.

$$\kappa = \kappa' - j\kappa'', \quad \tan\delta = \frac{\kappa''}{\kappa'} \quad (1)$$

여기서, κ 는 복소 유전상수, κ' 는 비유전상수, κ'' 는 허수부 유전상수이다. 이러한 인자와 관련되어 재료에 흡수되는 마이크로파 에너지(power), P는 다음 식과 같이 표시된다.^{16,18)}

$$P = \frac{1}{2}E^2\omega\kappa'\tan\delta \quad (2)$$

여기서, E는 전기장의 세기(electric field strength), ω 는 $2\pi f$, 여기서 f는 진동수(operating frequency), $\tan\delta$ 는 상기 (1)식에 표시된 손실정접(loss tangent)이다. 마이크로파 가열은 상기 식과 같이 재료 내부에서 전체적으로 균일한 부피가열(volumetric heating)이 이루어 질 수 있음을 보이고 있다. 한편, 재래식 가열은 시료 외부로부터 시료 내부로 열 전달이 이루어지면서 가열되는 방식이다. 이러한 특성을 고려할 때 본 시료 합성에서, 재래식 가열에 의한 핵 생성과 성장은 마이크로파 가열에 비하여 불균질하게 이루어 진다고 보아진다.

4. 결 론

결론적으로 본 연구 결과 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + \text{Na}_2\text{SO}_4$ 분말 혼합물로부터 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 판상체를 합성할 때 마이크로파 가열은 재래식 가열에 비하여 입자크기가 작고 입자 분포가 좁은 입자를 합성할 수 있는 가열법임을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구 과제번호 R01-2000-000-00225-0 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. M. C. Fredel and A. R. Boccaccini, "Processing and Mechanical Properties of Biocompatible Al_2O_3 Platelet-Reinforced TiO_2 ," *J. Mater. Sci.*, **31** [16] 4375-80 (1996).
2. R. K. Roeder, K. P. Trumble and K. J. Bowman, "Microstructure Development in Al_2O_3 -platelet-reinforced Ce-ZrO₂/ Al_2O_3 Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, **80** [1] 27-36 (1997).
3. R. F. Hill, R. Danzer and R. T. Paine, "Synthesis of Aluminum Oxide Platelets," *J. Am. Ceram. Soc.*, **84** [3] 514-20 (2001).
4. R. F. Hill and P. H. Supancic, "Thermal Conductivity of Platelet-filled Polymer Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, **85** [4] 851-57 (2002).
5. T. Kimura, M. Machida, T. Yamaguchi and R. E. Newnham, "Products of Reaction Between PbO and Nb₂O₅ in Molten KCl and NaCl," *J. Am. Ceram. Soc.*, **66** [10] C195-97 (1983).
6. A. C. Tas, "Molten Salt Synthesis of Calcium Hydroxyapatite Whiskers," *J. Am. Ceram. Soc.*, **84** [2] 295-300 (2001).
7. S. Hashimoto and A. Yamaguchi, "Formation of Porous Aggregations Composed of Al_2O_3 Platelets Using Potassium Sulfate Flux," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **19** 335-39 (1999).
8. S. Hashimoto and A. Yamaguchi, "Synthesis of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ Platelets Using Sodium Sulfate Flux," *J. Mater. Res.*, **14** [12]

- 4667-72 (1999).
9. S. S. Park, J. H. Kim, S. W. Kim, S. H. Lee, J. H. Park and H. C. Park, "Microwave Synthesis of Alpha Alumina Platelets Using Flux Method," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **39** [5] 473-78 (2002).
 10. W. H. Sutton, "Microwave Processing of Ceramic Materials," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **68** [2] 376-86 (1989).
 11. S. E. Lee, B. W. Kim, S. S. Park and H. C. Park, "The Study for the Characteristics of Microwave Coupled V₂O₅-PbO-TeO₂ Glass System," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [5] 438-45 (2001).
 12. S. S. Park, K. S. Jung, B. W. Kim, S. E. Lee and H. C. Park, "Microwave Heating Induced Crystallisation of PbTiO₃ from a PbO-B₂O₃-ZnO-TiO₂ Glass Joined to Alumina," *Glass Technol.*, **43** [2] 70-4 (2002).
 13. H. K. Kang, K. H. Kim and H. C. Park, "Preparation of Fe-Free Alumina Powder from Kaolin," *J. Mater. Sci. Lett.*, **14** 425-27 (1995).
 14. H. C. Park, J. H. Park, B. W. Kim, S. E. Lee, J. H. Kim and S. S. Park, "A Study for the Synthesis and Characterization of γ -alumina Powder by Ultrasonic Irradiation(in Kor.)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [10] 921-27 (2001).
 15. D. J. Duval, M. J. E. Terjak, S. H. Risbub and B. L. Phillips, "Microwave Melting of Ion-conducting Glasses," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **430** 125-29 (1996).
 16. J. Suhm, "Rapid Wave Microwave Technology for Drying Sensitive Products," **79** [5] 69-71 (2000).
 17. S. S. Park, E. H. Hwang, B. C. Kim and H. C. Park, "Synthesis of Hydrated Aluminum Sulfate from Kaolin by Microwave Extraction," *J. Am. Ceram. Soc.*, **83** [6] 1341-45 (2000).
 18. A. C. Metaxas and R. J. Meredith, "Industrial Microwave Heating," pp. 70-73, Peter Peregrinus Ltd., London, 1993.