

## 분무열분해공정에 의한 인듐 산화물 나노 분말 제조에 미치는 반응인자들의 영향

유재근

호서대학교 신소재공학전공

### Effect of Reaction Factors on the Fabrication of Nano-Sized Indium Oxide Powder by Spray Pyrolysis Process

Jae-Keun Yu

*Department of Advanced Materials Engineering, Hoseo University,  
San 29-1, Sechul-Ri, Baebang-Myun, Asan-Si, ChungNam 336-795, Korea*  
(Received 1 October 2004 ; Accepted form 3 December 2004)

**Abstract** In this study, nano-sized indium oxide powder with the average particle size below 100 nm is fabricated from the indium chloride solution by the spray pyrolysis process. The effects of the reaction temperature, the concentration of raw material solution and the inlet speed of solution on the properties of powder were studied. As the reaction temperature increased from 850 to 1000°C, the average particle size of produced powder increased from 30 to 100 nm, and microstructure became more solid, the particle size distribution was more irregular, the intensity of a XRD peak increased and specific surface area decreased. As the indium concentration of the raw material solution increased from 40 to 350 g/l, the average particle size of the powder gradually increased from 20 to 60 nm, yet the particle size distribution appeared more irregular, the intensity of a XRD peak increased and specific surface area decreased. As the inlet speed of solution increased from 2 to 5 cc/min., the average particle size of the powder decreased and the particle size distribution became more homogeneous. In case of the inlet speed of 10 cc/min, the average particle size was larger and the particle size distribution was much irregular compared with the inlet speed of 5 cc/min. As the inlet speed of solution was 50 cc/min, the average particle size was smaller and microstructure of the powder was less solid compared with the inlet speed of 10 cc/min. The intensity of a XRD peak and the variation of specific area of the powder had the same tendency with the variation of the average particle size.

**Key words :** Nano-sized powder, Indium oxide, spray pyrolysis process, reaction temperature, concentration of solution, inlet speed of solution

### 1. 서 론

나노 크기의 금속산화물 분말을 제조하는 방법들 중 분무열분해법<sup>1)</sup>은 구성 성분들을 용액 상태에서 균일하게 혼합하여 원료 용액을 제조한 다음 이 용액을 반응로 내부로 미립화된 상태로 분무시킴으로써 고온에서 순간적으로 반응이 완료되는 현상을 이용하여 직접적으로 초미립의 금속산화물 분말을 제

조하는 방법이다. 이 방법은 고상 반응법에서 필수적인 과정들인 고상 분말들의 혼합과 분쇄 과정들을 생략시킬 수 있을 뿐 아니라 열분해 조건에 의해 입자 특성의 제어가 가능하고 불순물 혼입의 가능성이 적다는 공정상의 장점을 가지고 있다. 이에 따라 일본의 Scimarec, 독일의 Merck 및 미국의 SSC 등 기업체에서는 분무열분해법에 의해 제조된 고기능성 ceramic 분말들을 판매 하고 있다. 또한 최근에는 분

무열분해법에 의한 초미립의 금속산화물 분말의 제조에 관한 연구가 Majumdar<sup>1)</sup>, Pluym<sup>2,3)</sup> 및 Kudas<sup>4)</sup> 등에 의해 더욱 활발하게 이루어지고 있으며 응용되는 범위도 크게 확대되고 있는 상황이다.

국내의 경우 분무열분해법에 의한 산화물 분말 제조는 포항제철 및 동부제강 등에서 열연강판의 표면을 염산으로 산세 처리하는 과정에서 발생하는 폐산을 원료용액으로 사용하여 산화철 분말을 제조하는 공정에 응용되고 있다. 또한 폐동액으로부터 평균입도 1  $\mu\text{m}$  이하의 CuO 분말 제조<sup>8)</sup> 및 새도우마스크 제조 공정에서 발생하는 폐액으로부터 평균입도 100 nm 이하의 Ni-ferrite 분말 제조<sup>9,11)</sup> 등의 연구가 일부 이루어지고 있는 상황이다. 반면 이들 분야를 제외하고는 다른 분야의 단일 산화물 분말 및 복합산화물 분말 제조에는 분무열분해법이 전혀 적용되고 있지 못한 상황이다. 특히 최근에 디스플레이 분야 등에서 응용 범위가 급속하게 확대되고 있는 ITO 분말 및 인듐 산화물 분말에 대한 분무열분해법에 의한 제조는 거의 이루어지지 못하고 있으며 대부분 일본 등에서 수입되고 있는 실정이다.

따라서 본 연구에서는 인듐 염화물 용액을 원료로 사용하여 분무열분해 공정에 의해 입도분포 및 조성이 균일하면서 평균입도가 100 nm 이하인 인듐 산화물 분말을 제조하고 반응온도, 원료용액의 농도 및 용액의 유입속도의 반응인자들의 변화에 따른 생성 분말의 특성 변화를 파악하고자 한다.

## 2. 실험방법

본 연구에서는 25% HCl 용액에 350 g의 In 성분을 용해시킨 다음 이 용액을 여과지로 2회 여과시킨 후 분무열분해를 위한 원료 용액으로 사용하였다. 제조된 용액의 농도는 거의 포화농도에 가까웠으며, 이 용액을 증류수로 희석시킴에 의해, 최종 제조된 원료 용액 내의 In 농도가 350, 200, 100 및 40 g/l가 되도록 다양하게 조절하였다. 사용된 In의 원료는 99.9% 순도의 In chip이었다.

본 연구에서는 In 염화물 용액을 원료로 하여 분무열분해 공정에 의해 입자형상 및 입도분포 등의 특성이 균일하며 평균입도가 100 nm 이하인 인듐산화물 분말을 형성시키기 위하여 분무열분해 장치를 직

접 설계 및 제작하였다. 즉 원료 용액을 효율적으로 미립화시킨 후 반응로 내로 분무시킬 수 있으며, 반응로 내부는 균일한 열분포를 이루어 열분해반응이 완전하게 진행될 뿐만 아니라, 생성된 분말을 bag filter 포집장치에서 효율적으로 포집할 수 있으며, 유해 생성가스를 청정 시킬 수 있는 scrubber 장치까지 포함하는 분무열분해 system을 제작하였으며 이를 그림 1에 나타내었다. 용액의 미립화 장치로는 tip 내경이 2 mm인 titanium 재질의 nozzle을 사용하였다. 열분해 반응로는 온도 분포를 균일하게 하기 위하여 4개의 로를 결합한 높이 150 cm의 4 zone type의 원통형 수직관상로서 최고 1500°C에서 작동이 가능하게 제작되었다. 분말 포집장치는 내부 부피가 500 l이고 6개의 bag을 설치한 bag filter를 사용하였다. 또한 bag filter를 통과한 HCl 등의 생성기체는 이류체 방식의 nozzle을 사용한 scrubber 장치를 통과시킴으로써 HCl 용액 등으로 처리하였다.

본 연구에서는 원료용액을 2~50 cc/min의 유속으로 nozzle의 한쪽 입구를 통하여 공급하고, 3 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 압축된 공기를 nozzle의 다른 쪽 입구로 투입하여 용액을 미립화시킨 후 850~1000°C로 유지된 반응로 내에서 열분해시킴으로써 각각의 반응 조건에 따른 다양한 물리적, 화학적 특성을 나타내는 평균입도 100 nm 이하인 인듐 산화물 분말을 제조하였다. 다양한 반응인자들의 변화에 따라 생성된 각각의 분말들의 특성 변화는 SEM(입도분포, 평균입도 및 입자형상의 변화), XRD 분석(분말의 상 및 조성의 변화) 및 비표면적 측정을 통하여 파악하였다.

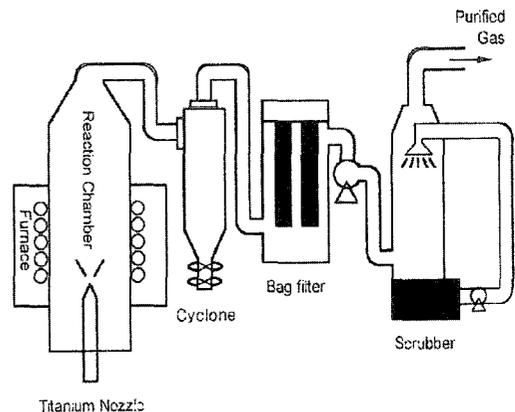


Fig. 1. Schematic diagram of spray pyrolysis system.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 생성된 분말의 특성에 미치는 반응온도의 영향

그림 2는 원료용액 내의 In 성분의 농도가 350 g/l, 용액의 유입속도는 5 cc/min, 노즐 tip 크기는 2 mm, 공기압력은 3 kg/cm<sup>2</sup>로 유지되는 경우에 열분해 반응 온도가 850°C로부터 1000°C로 변화함에 따라 나타나는 입자들의 특성변화를 SEM에 의해 나타낸 결과이다. 반응온도의 증가에 따라 생성되는 분말의 평균입도는 증가하고 있었으며 조직도 현저하게 치밀화됨을 알 수 있었다. 원료용액은 nozzle에 의해 미립화되어 액적을 형성하게 되며 액적은 반응로 내부로 유

입된 후 열분해 반응이 진행될 때 액적의 표면에서부터 InCl<sub>3</sub>의 용질이 고상화되어 석출되기 때문에 액적 내부에 존재하는 용매가 표면의 고상층을 원활하게 통과하지 못하면 액적 내부의 압력은 증가하게 되고 결국 액적은 분열되게 된다. 특히 본 반응조건의 경우와 같이 원료용액의 농도가 높은 경우에는 액적의 분열현상은 더욱 현저하게 일어나게 된다. 반응온도 850°C에서는 미립화된 액적이 반응영역으로 유입되자마자 표면에서의 급격한 용매의 증발로 인하여 액적은 심하게 분열된다. 본 연구에서는 열분해반응이 일어나는 영역이 매우 짧을 뿐 아니라 반응온도 850°C에서는 미립의 고상 분말을 충분히 소결시킬 만

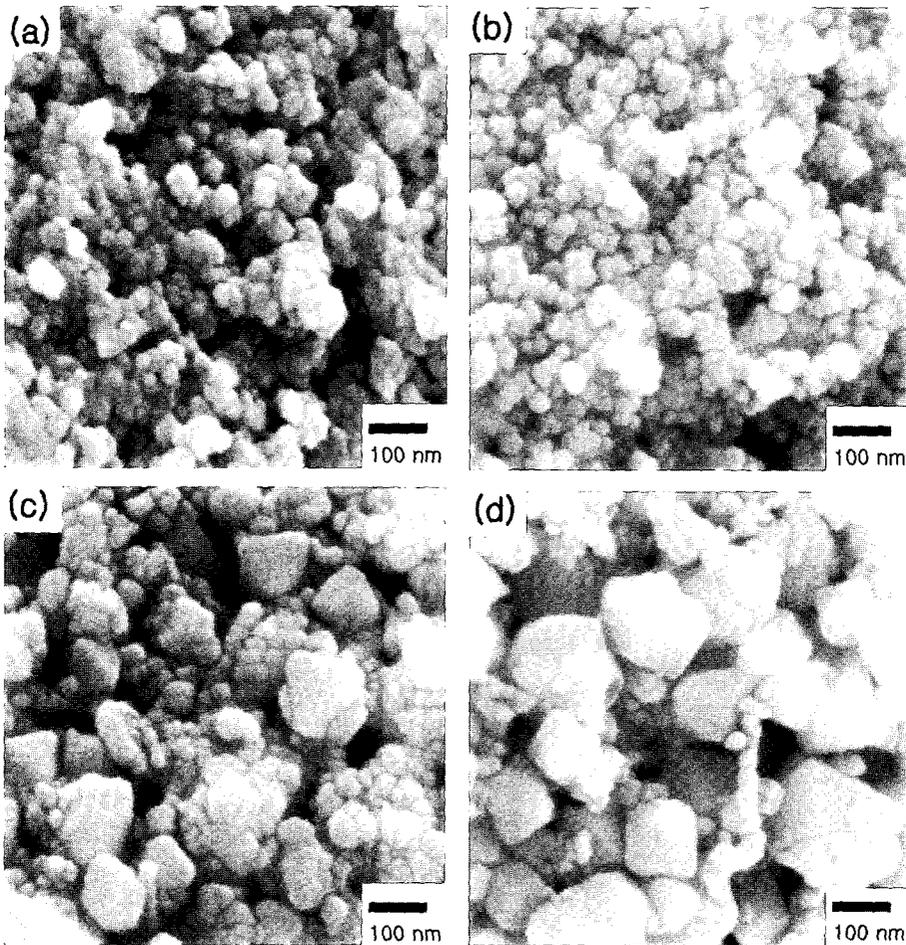


Fig. 2. SEM photographs of produced powder according to reaction temperature at raw material solution of 350 g/l In, 10 cc/min inlet speed of solution, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure. (a) 850°C (b) 900°C (c) 950°C (d) 1000°C

큰 온도가 높지 못하기 때문에 최종 생성된 분말의 평균입도는 30~40 nm 정도로 미세하게 나타났으며 이들 구형의 나노 입자들은 서로 응집되는 경향이 매우 강함을 알 수 있었다. 반응온도 900°C의 경우에는 온도의 증가에 따른 용매의 더욱 급속한 증발에 의하여 열분해 과정의 초기에 액적분열 현상은 더욱 심하게 일어나기 때문에 반응초기에 형성된 고상 분말의 입도는 850°C의 경우보다 작고 불균일하게 나타나게 된다. 반면 높은 반응온도로 인하여 초미립 입자들의 소결이 진행되지만 미립의 고상분말을 충분히 소결시킬 만큼 반응온도가 높지 못하기 때문에 최종 생성된 분말들의 평균입도는 850°C의 경우와 거의 비슷한 정도로 미세하게 나타남을 알 수 있었다. 반응온도 950°C의 경우에는 열분해 반응의 초기 단계에서 액적 분열현상이 더욱 심하게 나타 나지만 높은 반응온도로 인하여 입자들 사이의 소결이 매우 빠르게 진행되기 때문에 분말들의 입도분포는 30~40 nm 정도부터 최대 100 nm 정도까지 공존하는 매우 불균일한 형태를 나타내고 있었다. 반면 분말의 평균입도는 전체적으로 현저히 증가하였으며 입자 표면이 매우 치밀할 뿐 아니라 대부분의 입자들이 다 각형의 형상을 나타내게 되어 입자들 사이의 응집현

상도 현저히 감소함을 알 수 있었다. 한편 1000°C의 경우에는 높은 반응 온도로 인하여 액적 표면은 순간적으로 고산화 반응이 일어나게 되기 때문에 액적 내부의 압력이 현저하게 증가하게 되어 액적의 심한 분열이 일어나게 된다. 따라서 반응초기에 형성된 고상 분말의 입도는 매우 작게 나타나게 되지만 높은 반응온도로 인하여 소결이 매우 빠르게 진행되기 때문에 최종 생성된 분말들의 입도분포는 30~40 nm 정도부터 최대 150 nm 정도까지 공존하는 매우 불규칙한 형태를 나타내고 있었다. 반면 분말의 평균입도는 950°C의 경우보다 전체적으로 현저히 증가하게 되었으며 입자표면도 더욱 치밀할 뿐 아니라 성장한 입자들은 각각 독립된 형태를 나타내고 있음을 알 수 있었다. 그림 3은 XRD 분석에 의해 각각의 반응온도 하에서 생성된 분말들의 상을 나타낸 결과이다. 반응 온도에 관계없이  $\text{In}_2\text{O}_3$  상만이 존재하고 있음을 알 수 있었다. 가장 낮은 반응온도인 850°C에서도  $\text{InCl}_3$  등의 염화물들은 나타나지 않았으며 이 결과로부터 본 연구의 반응조건들에서는  $2\text{InCl}_3 + 3\text{H}_2\text{O} = \text{In}_2\text{O}_3 + 6\text{HCl}$ 의 충분한 열분해반응이 진행됨을 알 수 있었다. 반응온도가 850°C로부터 900°C로 증가함에 따라 XRD peak의 강도는 거의 변화가 없었으며 이 결과는 그

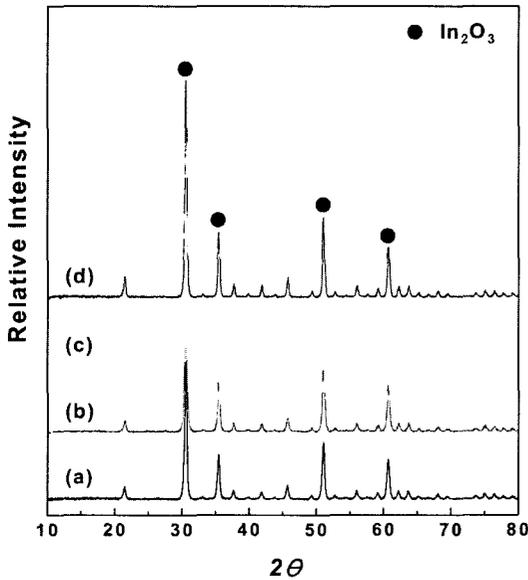


Fig. 3. XRD patterns of powder according to reaction temperature at raw material solution of 350 g/l In, 10 cc/min inlet speed of solution, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure. (a) 850°C (b) 900°C (c) 950°C (d) 1000°C

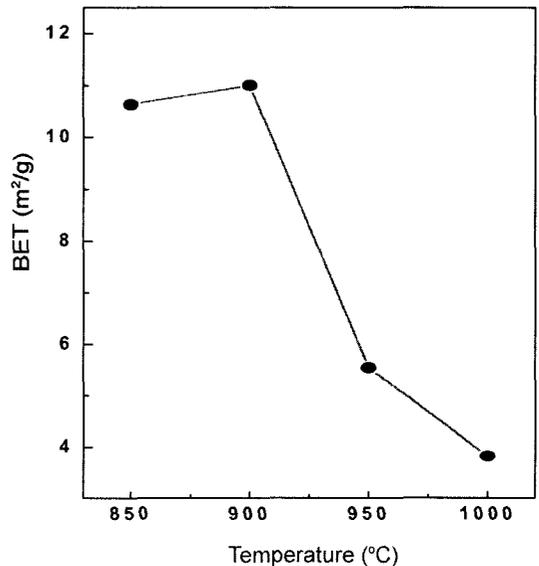


Fig. 4. Specific surface areas of powder according to reaction temperature at raw material solution of 350 g/l In, 10 cc/min inlet speed of solution, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure.

림 2에서 나타낸 바와 같이 두 반응온도에서 평균입도가 거의 유사함에 기인하는 것으로 판단된다. 반응온도가 950°C 및 1000°C로 증가됨에 따라 XRD peak의 강도는 점점 증가하였으며 이 결과는 그림 2에서 나타낸 바와 같이 반응온도가 증가함에 따라 분말들의 평균입도가 증가함에 기인하는 것으로 판단된다. 그림 4는 반응온도의 변화에 따른 생성된 분말들의 비표면적의 변화를 나타낸 결과이다. 반응온도가 850°C로부터 900°C로 증가함에 따라 비표면적은 거의 변화가 없었으며 이 결과는 그림 2에서 나타낸 바와 같이 두 반응온도에서 평균입도가 거의 유사함에 기인하는 것으로 보인다. 반면 반응온도가 950°C 및 1000°C로 증가됨에 따라 분말들의 비표면적은 현저히 감소하고 있었으며 특히 1000°C의 경우는 850°C나 900°C의 경우에 비해 비표면적이 1/2 정도로 현저히 감소함을 알 수 있었다. 이 결과는 그림 2에서 나타낸 바와 같이 반응온도가 증가함에 따라 분말들의 평균입도가 현저히 증가하고 조직도 더욱 치

밀화됨에 기인하는 것으로 사료된다.

### 3.2. 분말의 특성에 미치는 원료용액 농도의 영향

그림 5는 반응온도가 900°C, 용액의 유입속도는 10 cc/min, 노즐 tip 크기는 2 mm, 공기압력은 3 kg/cm<sup>2</sup>로 유지되는 경우에 원료용액 내의 In 성분 농도 변화에 따른 열분해반응에 의해 생성된 분말들의 특성변화를 SEM에 의해 나타낸 결과이다. In 성분의 농도가 40 g/l로부터 350 g/l로 증가됨에 따라 분말의 평균입도는 점점 증가하는 반면 입도분포는 더욱 불균일하게 나타남을 알 수 있었다. 농도가 40 g/l로 낮은 경우에는 용매가 증발된 후의 액적 크기가 매우 작게 될 뿐만 아니라 열분해 과정에서의 액적분열현상도 현저히 감소하게 되므로 최종적으로 생성된 분말의 평균입도는 20~30 nm 정도로 매우 작게 나타나는 반면 입도분포는 상당히 균일하게 나타남을 알 수 있었다. 또한 이들 나노 입자들은 낮은 농도로 인한 용매의 과도한 증발열로 인하여 입자들

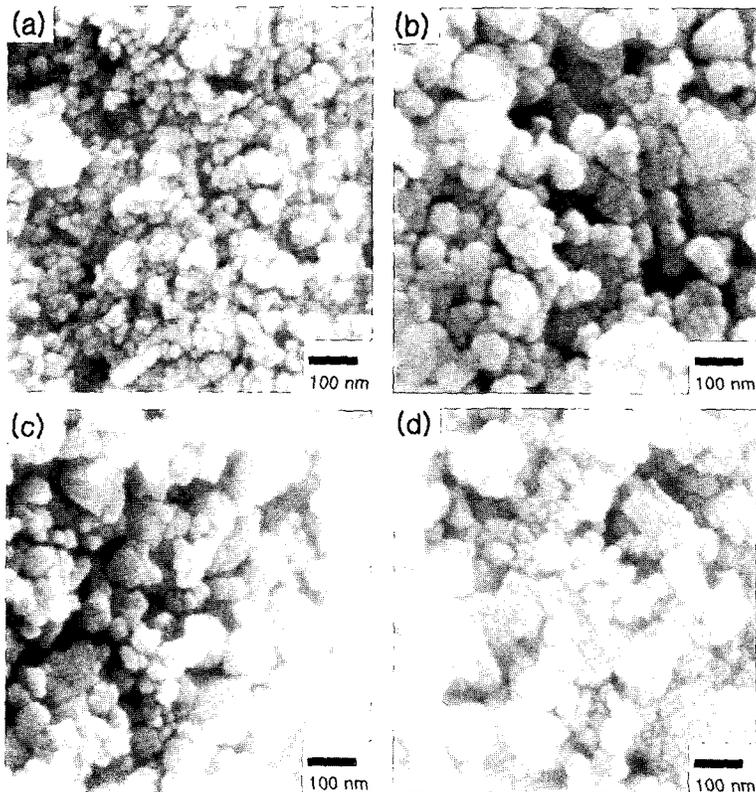


Fig. 5. SEM photographs of produced powder according to indium concentration of raw material solution at 900°C, 10 cc/min inlet speed of solution, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure. (a) 40 g/l (b) 100 g/l (c) 200 g/l (d) 350 g/l

사이의 소결이 충분히 일어나지 않고 서로 응집되는 경향이 매우 강함을 알 수 있었다. 농도가 100 g/l 및 200 g/l로 증가되는 경우에는 용매 증발 후의 액적 크기가 현저히 감소되지 않는 반면 액적 크기 증가에 따라 열분해 과정에서 액적 분열현상이 심하게 되기 때문에 생성된 분말의 입도는 40~50 nm로 증가하는 반면 입도분포는 현저히 불균일해지고 입자들 사이의 응집현상도 심하게 됨을 알 수 있었다. 한편 농도가 350 g/l로 증가되는 경우에는 열분해 반응의 초기단계에서부터 액적 표면에서의 용질의 과포화 현상이 일어나게 되어 액적 내의 용매의 증발에 따른 액적 크기의 감소는 거의 나타나지 않게 되기 때문에 액적 크기는 낮은 농도의 경우에 비해 크게 증가하는 반면 액적 크기의 증가에 따른 열분해과정에서의 액적분열은 매우 심하게 일어나게 되므로 최종 생성된 분말의 입도는 50~60 nm 이상으로 크게 증가하는 반면 입도분포는 매우 불균일 나타나고 있음을 알 수 있었다. 그림 6은 그림 5와 동일한 반응 조건에서 각각의 원료용액 농도 하에서 생성된 분말들의 상을 XRD 분석에 의해 나타낸 결과이다. 용액의 농도에 관계없이  $\text{In}_2\text{O}_3$  상만이 존재하고 있음을 알 수 있었다. 용액의 농도가 낮을 수록 반응로 내에서 액적 내의 용매의 증발이 증가하며 또한 증발에 상당한 시간이 소요될 뿐 아니라 용매의 증발열 증가로 인한 주위 온도의 감소 효과가 더욱 현저하게 나타나게 되지만 본 연구의 반응조건에서는 가장 낮은 용액 농도인 40 g/l의 경우에서도  $\text{InCl}_3$  등의 염화물들은 나타나지 않았으며  $2\text{InCl}_3 + 3\text{H}_2\text{O} = \text{In}_2\text{O}_3 + 6\text{HCl}$  열분해 반응이 충분히 진행됨을 알 수 있었다. 용액의 농도가 증가함에 따라 XRD peak의 강도는 점점 증가하고 있었으며 특히 농도가 40 g/l로부터 100 g/l로 증가할 때 peak의 강도는 현저히 증가하고 있었다. 이 결과는 그림 5에서 나타낸 바와 같이 원료용액의 농도가 증가할수록 분말들의 평균입도가 점점 증가하며 특히 농도가 40 g/l로부터 100 g/l로 증가할 때 분말들의 평균입도가 현저히 증가함에 주로 기인하는 것으로 판단된다. 그림 7은 원료용액의 농도 변화에 따른 생성된 분말들의 비표면적의 변화를 나타낸 결과이다. 용액의 농도 증가에 따라 비표면적은 점점 감소하고 있었으며 특히 농도가 40 g/l로부터 100 g/l로 증가되는 경우에 비표면적은 현저히 감소하고 있음을 알 수 있었다. 그림 5에서 나타낸 바와 같이 용액의 농도 증

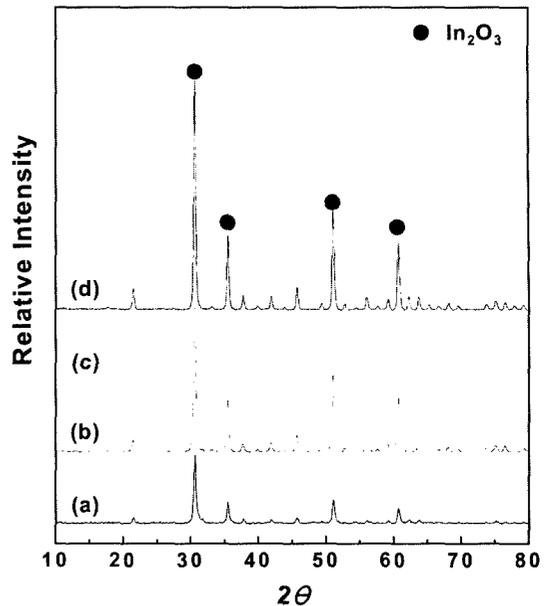


Fig. 6. XRD patterns of powder according to indium concentration of raw material solution at 900°C 10 cc/min inlet speed of solution, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure. (a) 40 g/l (b) 100 g/l (c) 200 g/l (d) 350 g/l

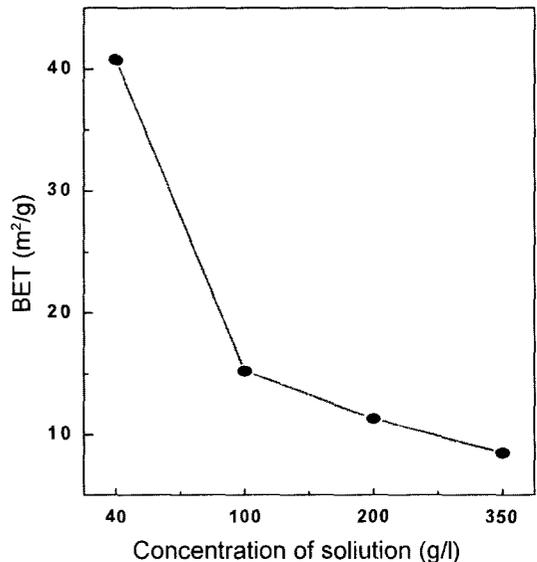


Fig. 7. Specific surface areas of powder according to indium concentration of raw material solution at 900°C, 10 cc/min inlet speed of solution, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure.

가에 따라 생성된 분말의 입도가 증가함으로써 비표면적이 점점 감소하고 있으며 특히 농도가 40 g/l로부터 100 g/l로 증가되는 경우에는 분말의 입도가 2배 정도 증가함으로써 비표면적이 현저하게 감소되는 것으로 사료된다.

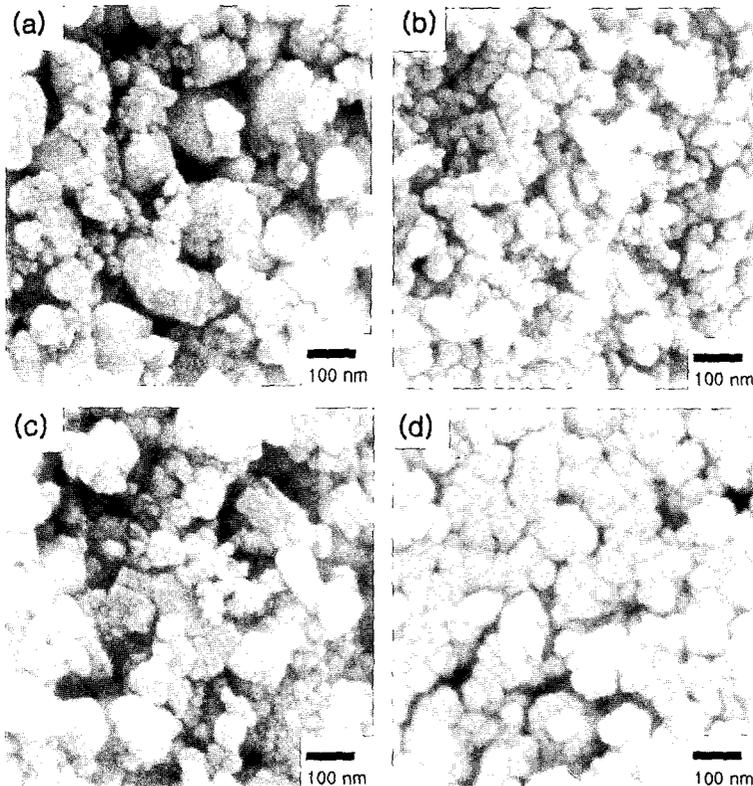
**3.3. 분말의 특성에 미치는 원료용액의 유입속도의 영향**

그림 8은 반응온도가 900°C, 원료용액 내의 In 성분의 농도가 350 g/l, 노즐 tip 크기는 2 mm이며 공기압력은 3 kg/cm<sup>2</sup>로 유지되는 경우에 원료 용액의 반응로 내부로의 유입속도 변화에 따른 열분해 반응에 의해 생성되는 분말들의 특성변화를 SEM에 의해 나타낸 결과이다. 용액의 유입속도가 2 cc/min로 매우 낮은 경우에는 20 nm 정도의 입도가 작은 입자들과 100 nm 정도의 입도가 현저히 큰 입자들이 공존하고 있음을 알 수 있었다. 또한 입도분포는 매우 불

균일한 반면 비교적 치밀한 조적을 나타내고 있었다. 일반적으로 이류체 노즐에 의해 형성되는 액적들의 평균입도는 다음의 식 (1)<sup>11</sup>에 의해 나타낼 수 있다.

$$X = 585 \frac{\sqrt{\sigma}}{v\sqrt{\rho}} + 579 \left( \frac{\mu}{v\sqrt{\sigma\rho}} \right)^{0.45} \frac{1000Q_t^{1.5}}{Q_a} \quad (1)$$

여기서 X는 평균입도,  $\sigma$ 는 용액의 표면장력,  $\rho$ 는 밀도, v는 용액의 분사속도,  $\mu$ 는 점도,  $Q_t$ 은 용액의 양,  $Q_a$ 는 유입 공기량을 나타낸다. 따라서 용액의 유입속도가 2 cc/min로 매우 낮은 경우에는 미립화되는 액적 크기가 작게 되고 열분해 과정에서의 액적 분열 현상도 거의 나타나지 않기 때문에 최종적으로 생성되는 분말들의 평균입도는 매우 작게 될 것으로 예상된다. 그러나 미립화되는 액적 크기가 작고 액적들의 수가 많은 경우에는 액적들 사이의 응집 현상이 현저해지며 속도도 빨라지게 된다. 즉 다음의 식 (2)<sup>12</sup>에서 액적들 사이의 충돌에 대한 원인이 Brown



**Fig. 8.** SEM photographs of produced powder according to inlet speed of solution at 900°C, raw material solution of 350 g/l In, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure. (a) 2 cc/min; (b) 5 cc/min; (c) 10 cc/min; (d) 50 cc/min

운동이라고 가정하면  $\beta$ 는 상수로 가정할 수 있기 때문에 초기 미립화되는 액적 크기가 감소함에 따라 액적들 사이의 응집 가능성은 현저히 증가하게 된다.

$$(N_i/N_0) = 1/(1+i\tau_c) \quad (2)$$

여기서  $N_i$ 는 초기 액적의 수,  $N_t$ 는 임의의 시간  $t$ 에서의 액적 수,  $\tau_c$ 는  $2/\beta N_0$ ,  $\beta$ 는 응집 속도상수이다. 이에 따라 열분해 반응이 일어나기 전의 액적 분포는 낮은 용액의 유입 속도로 인한 입도가 매우 작은 액적들과 액적들 사이의 심한 응집현상으로 인한 입도가 현저히 증가한 액적들이 공존하게 될 것으로 예상된다. 따라서 열분해 반응에 의해 최종 생성되는 분말들이 입도가 20 nm 정도인 입자들과 100 nm 정도인 입자들이 공존하는 상태를 나타내고 있다고 사료된다. 용액의 유입속도가 5 cc/min인 경우에는 생성된 분말들의 평균입도는 30 nm 정도이고 입도분포도 비교적 균일하게 나타남을 알 수 있었다. 이 결과는 용액의 유입속도가 5 cc/min인 경우에는 액적 크기가 2 cc/min의 경우보다 현저히 증가하기 때문에 액적들 사이의 응집현상이 크게 감소할 뿐 아니라 미립화되는 액적 크기가 비교적 작기 때문에 열분해 과정에서 액적분열 현상이 심하게 나타나지 않는다는 사실에 기인하는 것으로 사료된다. 용액의 유입속도가 10 cc/min인 경우에는 입도가 30 nm 정도인 입자들과 50~60 nm이상인 입자들이 공존하는 매우 불규칙한 입도분포를 나타내고 있었다. 이 결과는 용액의 유입속도가 10 cc/min로 더욱 증가함에 따라 미립화되는 액적 크기가 증가되기 때문에 열분해 반응에 의해 생성되는 분말의 입도가 증가하게 되는 효과가 나타나는 반면 액적 크기 증가에 의해 액적분열 현상은 더욱 심해지는 효과도 복합적으로 작용함으로써 나타나는 것으로 사료된다. 한편 용액의 유입속도가 50 cc/min로 증가되는 경우에는 생성되는 분말들의 평균입도는 30~40 nm이었지만 입자들 사이의 응집 현상이 매우 심하고 치밀하지 못한 조직을 나타내고 있음을 알 수 있었다. 유입속도가 50 cc/min로 증가함에 따라 미립화되는 액적 크기가 현저히 증가하게 되어 액적분열 현상이 더욱 심해지는 효과가 나타나는 반면 액적 내 용매의 증발열 증가에 따른 입자들 사이의 소결현상이 크게 감소되는 효과도 복합적으로 작용함으로써 최종 생성되는 분말들의 평

균입도는 30~40 nm로 작게 나타나지만 전체적으로 조직이 치밀하지 못하고 입자들 사이의 응집 현상도 심하게 나타나게 된 것으로 사료된다. 그림 9는 그림 8과 동일한 반응조건 하에서 XRD 분석에 의해 용액의 유입속도 변화에 따른 생성된 분말들의 상의 변화를 나타낸 결과이다. 용액의 유입속도에 관계없이  $In_2O_3$  상만이 존재하고 있음을 알 수 있었다. 용액의 유입 속도가 2 cc/min로부터 5 cc/min로 증가하는 경우에는 XRD peak의 강도는 크게 감소함을 알 수 있었다. 이 결과는 그림 8에서 나타낸 바와 같이 용액의 유입속도가 2 cc/min로 낮은 경우에는 nozzle에 의해 미립화된 입도가 매우 작은 액적들 사이의 심한 응집현상으로 인하여 열분해 반응에 의해 생성되는 분말들의 평균입도가 유입속도 5 cc/min의 경우보다 크게 증가하게 됨에 기인하는 것으로 사료된다. 용액의 유입속도가 10 cc/min로 증가된 경우에는 XRD peak의 강도가 유입속도 5 cc/min의 경우보다 크게 증가하였으며 2 cc/min의 경우와는 비슷한 강도를 나타냄을 알 수 있었다. 이 결과는 열분해반응에 의해 생성되는 분말들의 평균입도의 변화의 결과와 경향이 거의 일치함을 알 수 있었다. 한편 용액의 유

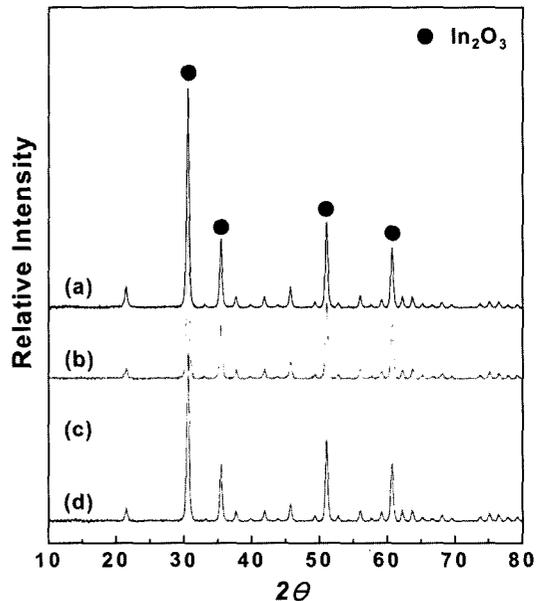


Fig. 9. XRD patterns of powder according to inlet speed of solution at 900°C, raw material solution of 350 g/l In, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure.

(a) 2 cc/min; (b) 5 cc/min; (c) 10 cc/min; (d) 50 cc/min

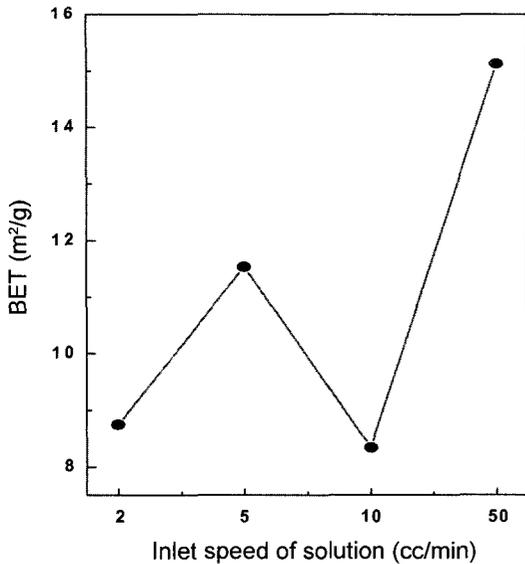


Fig. 10. Specific surface areas of powder according to inlet speed of solution at 900°C, raw material solution of 350 g/l In, 2 mm nozzle tip size and 3 kg/cm<sup>2</sup> air pressure.

입속도가 50 cc/min로 증가된 경우에는 XRD peak의 강도가 10 cc/min의 경우 보다 크게 감소하고 있었다. 이 결과는 유입속도가 50 cc/min로 높은 경우에는 미립화되는 액적의 분열 현상이 매우 심하게 되며 액적 내 용매의 증발열 증가에 따른 열분해반응에 의해 생성되는 입자들 사이의 소결현상이 크게 감소됨으로써 입자들의 평균입도가 현저히 감소하게 되고 치밀화되지 못한 조직을 나타내게 됨에 기인하는 것으로 사료된다. 그림 10은 그림 8과 동일한 반응조건 하에서 용액의 유입속도 변화에 따른 생성된 분말의 비표면적의 변화를 나타내었다. 용액의 유입속도가 2 cc/min로 부터 5 cc/min로 증가함에 따라 분말들의 비표면적은 증가하고 있음을 알 수 있었다. 용액의 유입속도가 2 cc/min로 매우 낮은 경우에는 열분해 반응에 의해 생성되는 분말들의 평균입도가 유입속도 5 cc/min의 경우보다 증가하게 됨으로써 분말들의 비표면적이 오히려 증가하게 된 것으로 사료된다. 용액의 유입속도가 10 cc/min의 경우에는 그림 8에 나타난 바와 같이 5 cc/min의 경우보다 평균입도가 크기 때문에 비표면적이 다시 감소하였으며 2 cc/min의 경우와는 비슷한 값을 나타내고 있음을 알 수 있었다. 한편 용액의 유입속도가 50 cc/

min로 증가되는 경우에는 생성된 분말들의 평균입도가 크게 감소함으로써 비표면적도 크게 증가하였음을 알 수 있었다.

#### 4. 결 론

인듐 성분을 포함하는 원료용액을 분무열분해시킴에 의해 평균입도 100 nm 이하의 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 나노 분말을 제조하였으며 반응온도, 원료용액의 농도 및 용액의 유입속도 변화에 따른 생성된 분말들의 특성 변화를 파악하였다.

1) 반응온도가 850°C로부터 1000°C로 증가함에 따라 생성된 분말의 평균입도는 30~40 nm로부터 100 nm 이상까지 증가하고 있었으며, 조직도 점점 치밀화되는 반면 입도 분포는 더욱 불균일하게 나타나고 있었다. 또한 반응온도의 증가에 따라 XRD peak의 강도는 증가하였으며 비표면적은 감소하고 있었다.

2) 원료용액 내의 In 성분의 농도가 40 g/로부터 350 g/로 증가됨에 따라 생성된 분말의 평균입도는 20~30 nm로부터 50~60 nm로 점점 증가하였고, XRD peak의 강도도 증가하였으며, 비표면적은 점점 감소한 반면 입도분포는 더욱 불균일하게 나타나고 있었다.

3) 용액의 유입속도가 2 cc/min로 5 cc/min로 증가됨에 따라 분말들의 평균입도는 감소하고 입도분포는 더욱 균일하였으며, XRD peak의 강도는 감소하는 반면 분말들의 비표면적은 증가하고 있었다. 유입속도가 10 cc/min인 경우에는 유입속도 5 cc/min의 경우보다 평균입도는 크게 증가하고 불균일한 입도분포를 나타내고 있었으며, XRD peak의 강도는 증가하는 반면 비표면적은 감소하고 있었다. 용액의 유입속도가 50 cc/min로 증가되는 경우에는 분말들의 평균입도는 30~40 nm이고 치밀하지 못한 조직을 나타내었으며, XRD peak의 강도는 감소하는 반면 비표면적은 증가하고 있었다.

#### 참고문헌

1. D. Majumdar, T. A. Shefelbine and T. T. Kodas: J. Mater. Res., **11** (1996) 2861.
2. T. C. Pluym, S. W. Lyons, Q. H. Powell, A. S. Gurav and T. T. Kodas: Mat. Res. Bull., **28** (1993) 369.
3. T. C. Pluym and T. T. Kodas: J. Mater. Res., **10** (1995) 1661.

4. T. Kostas and A. Datye: J. Appl. Phys., **65** (1989) 2149.
5. A. R. Pebler: J. Mater. Res., **5** (1990) 680.
6. M. A. A. Elmasry, A. Gaber and E. M. H. Khater: Powder Technology, **90** (1997) 165.
7. S. C. Zhang and G. L. Messing: J. Am. Ceram. Soc., **73** (1990) 61.
8. J. K. Yu and H.B. Park: Korean Journal of Materials Research, **12** (2002) 58.
9. J. K. Yu, S. K. Suh: Journal of Korean Powder Metallurgy Institute, **10** (2003) 262.
10. J. K. Yu: J. of Korean Inst. of Resources Recycling, **12** (2003) 38.
11. J. K. Yu, S. K. Suh, S. H. Park and J. S. Han: Journal of Korean Powder Metallurgy Institute, **119** (2004) 202.
12. G. L. Messing, S. C. Zhang and G. V. Jayanthi: J. Am. Ceram. Soc., **76** (1993) 2707.