

## Preparation of AlN Powder by Combustion Reaction in the System of Al-AlN-NH<sub>4</sub>Cl

Hyun Hong Min and Chang Whan Won<sup>†</sup>

Engineering Research Center for Rapidly Solidified Materials, Chungnam National University, Daejeon 305-764, Korea  
(Received July 3, 2006; Accepted July 12, 2006)

### Al-AlN-NH<sub>4</sub>Cl 계에서 연소반응에 의한 AlN 분말의 제조

민현홍 · 원창환<sup>†</sup>

충남대학교 급속응고신소재연구소  
(2006년 7월 3일 접수; 2006년 7월 12일 승인)

#### ABSTRACT

The preparation of AlN powder by SHS in the system of Al-AlN-NH<sub>4</sub>Cl was investigated in this study. In the preparation of AlN powder, the effect of gas pressure and the composition such as Al, AlF, and additive in mixture on the reactivity were investigated. At 60 atm of the initial inert gas pressure in reactor, the optimum composition for the preparation of pure AlN was 35 wt%Al+5 wt%NH<sub>4</sub>Cl+60 wt%AlN. The AlN powder synthesized in this condition was a single phase AlN with a whisker morphology.

**Key words :** SHS, AlN, Composition, NH<sub>4</sub>Cl, NaN<sub>3</sub>

#### 1. 서 론

Aluminum nitride(AlN)는 높은 열전도도 및 전기 저항성, 비교적 낮은 유전상수, Si와 유사한 열팽창 계수 등의 특징을 가지고 있으며 이러한 특징으로 고집적 기판 재료로의 사용이 매우 기대되고 있다.<sup>1-5)</sup> 질화 알루미늄은 사용범위가 상당히 넓고 다양하다. 본 연구의 목적인 내열충격성이 우수한 고수명 질화 알루미늄 뿐 아니라 원자로의 각종 주요부품, 반도체 회로의 고집적화와 고정밀화의 추세에 따른 박막저항체로서의 응용, 고강도·내열성·내마모성·내산화성이 요구되는 세라믹 가스 터빈 및 세라믹 디젤 엔진의 부품, 원자로의 펌프 및 제어봉 구동장치 및 공업용 공구 재료 등 그 이용범위는 매우 넓다. 또한 최근 기계공업의 급격한 팽창 및 고급화 추세에 따라 정밀금형 및 절삭공구 등에 이러한 경질 박막을 코팅시켜 수명증대, 기계가공의 고속화, 고정밀화 및 고능률화를 추진하고 있다. 그러나 이렇게 다양한 활용범위와 산업전분야에 걸쳐 적용할 수 있는 가능성이 있는 반면 현재 국내의 적용분야는 거의 연구차원에서 마무리되는 것이 현실이다. 이러한 질화물계 화합물들의 적용가능분야 및 고부가가치를 고려했을 때 이에 대한 연구개발은 꼭 필요한 것이라 할 수 있다. 그러나 제조 단가가 너무

높기 때문에 널리 사용되지 못하고 있다. 따라서 질화 알루미늄의 산업화는 더 이상 미룰 수 없는 중요한 사안이다. 현재 국내에서는 이러한 재료의 생산은 거의 전무한 상태이며, 더욱이 산업전반에 대한 그 활용은 극히 미미한 수준이다.

AlN 분말을 제조하는 데는 두가지 방법이 있다. 하나는 탄소환원질화법이고 다른 하나는 직접 질화법이다.<sup>6-8)</sup> 직접질화법(Direct Nitridation Method)은 알루미늄 분말을 질소나 암모니아 가스 분위기에서 약 1200~1500°C로 가열하여 질화시키는 방법으로 반응 장치가 간단하고 손쉬운 공정이나 완전한 질화 반응이 어렵기 때문에 균질화 처리 등의 후처리 공정이 필요한 번거로움이 있다. 탄소 환원 질화법(Carbothermal Reduction Method)은 알루미늄 분말과 과잉의 탄소를 혼합한 후 질소 분위기하에서 1700~2800°C로 가열하여 수 시간동안 유지시켜 합성하는 방법으로 높은 반응 온도가 요구되며, 또한 순수한 질화 알루미늄을 얻기 위해서는 부가적인 질화단계가 요구되어 생산 단가가 높은 편이다.

자전연소합성법(Self-propagating High temperature Synthesis, SHS)<sup>9-11)</sup>은 일반적으로 합성하기 어려운 세라믹 재료 제조시 발생하는 발열량을 이용하여 불과 수 초만에 고온(2000~4000°C)에서 합성하므로 소결성이 좋은 고순도 미분체를 합성할 수 있다. 따라서 이 방법은 반응시간을 최소화하여 단축시키며, 외부에서 열을 공급하지 않고, 실험장치가 간단한 이점이 있어 매우 경제적이다 볼 수 있다. 자전연소합성법에 의해 합성될 수 있는 소재에는 탄

<sup>†</sup>Corresponding author : Chang Whan Won  
E-mail : cwwon@cnu.ac.kr  
Tel : +82-42-821-5639 Fax : +82-42-822-9401

화물, 붕화물, 질화물, 수소화물, 규화물 등 200여가지나 된다.<sup>12-15)</sup>

본 연구에서는 자전연소합성법에 의한 질화 알루미늄을 합성함에 있어 자전연소합성이 어려운 알루미늄과 질소와의 직접 반응 대신에 알루미늄, 환원제로 질화 알루미늄, 첨가제로 NH<sub>4</sub>F를 혼합하여 반응시킴으로서 자전연소합성을 가능케 함과 동시에 자전연소합성에 영향을 주는 변수들을 조사하므로 고순도의 질화 알루미늄 분말을 합성하는 기초자료를 얻고자 하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서 사용된 자전연소반응기의 개략도와 사용된 원료 분말의 특성을 Fig. 1과 Table 1에 각각 나타내었다. 자전연소반응기의 재질은 SUS316을 사용하였고 반응기의 내부 부피는 5 L이다. 내부에 걸리는 최대 압력은 250 atm이 되도록 설계되었고 최대 사용 압력은 230 atm이 되도록 제조되었다. 반응기 내부는 진공과 분위기를

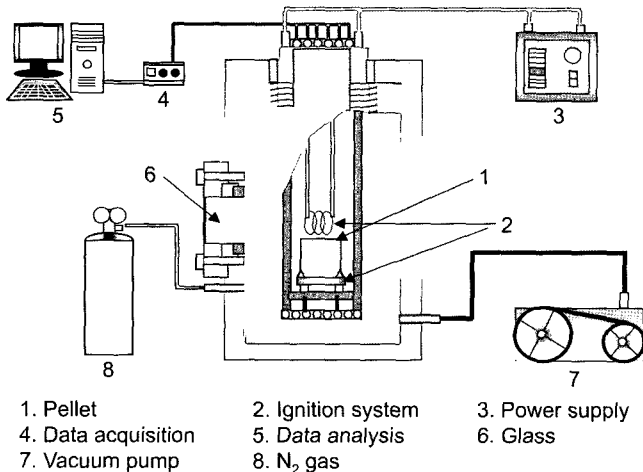


Fig. 1. Schematic diagram of SHS reactor.

Table 1. The Properties of Raw Materials Used in This Study

Materials	Particle size (μm)	Purity (%)	Manufacturer
Al	200 mesh	99.0	Samchun chemical (Daejeon, Korea)
AlN	<10 μm	98.0	Grand chemical (Daejeon, Korea)
NH <sub>4</sub> Cl	<10 μm	98.0	Samchun chemical (Daejeon, Korea)
NH <sub>4</sub> F	<5 μm	98.0	Grand chemical (Daejeon, Korea)
N <sub>2</sub> gas		99.999	Chung-ang gas (Daejeon, Korea)

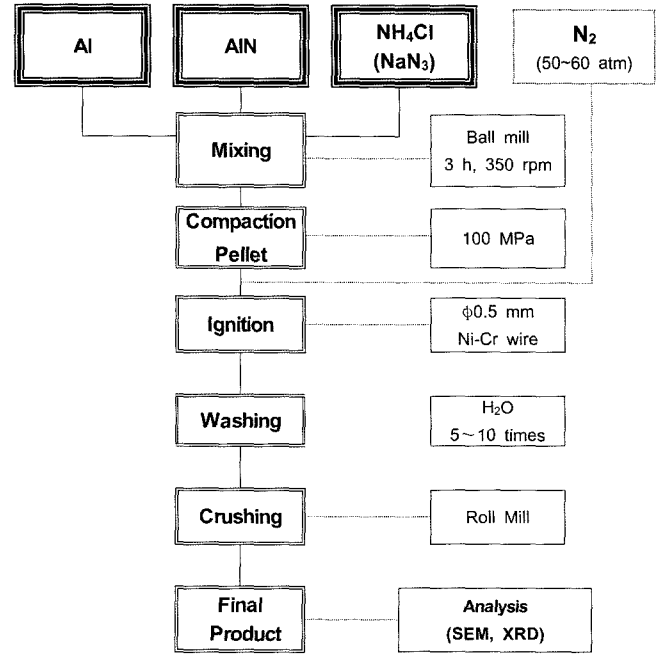


Fig. 2. Flow chart of experimental procedure of AlN synthesis.

만들 수 있도록 진공펌프와 in-gas valve가 장착되었고, 반응기 외부에는 반응의 진행을 관찰할 수 있도록 내열·내압유리가 부착되었다. 한편 연소반응기의 하부에는 C type(W/5%Re vs W/20%Re) 열전대를 설치하여 DASTC data logger를 통해 연소온도 및 냉각온도변화를 10 Hz의 표본추출비율로 연소반응의 온도 및 연소파의 전파속도를 측정하였다. Fig. 2에 본 실험의 공정도를 나타내었다. 각각의 분말을 소정의 물비로 칭량한 다음 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 볼밀에서 350 rpm의 속도로 약 3시간 동안 건식 혼합하였다. 혼합된 분말은 상온균일압축기(CIP, Cold Isostatic Pressing)를 이용하여 지름 30 mm, 높이 50~60 mm의 원기둥형 펠렛으로 제조하였으며, 이때 100 MPa의 성형압력으로 예비성형체를 만들었다. 이 예비성형체를 자전연소 고온반응기내에 장착하여 내부를 진공상태로 유지한 다음, 아르곤 가스를 주입하여 압력을 50~60 atm으로 유지한 후 Ni-Cr 필라멘트(직경 1 mm, 220 V, 60A)를 이용해 점화시켰다. 자전연소합성에 영향을 주는 인자들을 알아보기 위해 알루미늄과 질화 알루미늄의 물비, 첨가제의 종류를 변화시키면서 실험을 행하였다.

본 실험에서 얻은 생성물의 결정구조 분석은 XRD (SIEMENS사, Model:D5000)를 이용하였다. 또한 생성물의 미세구조를 관찰하기 위하여 SEM(JEOL사, Model:JSM-5410)을 사용하였다.

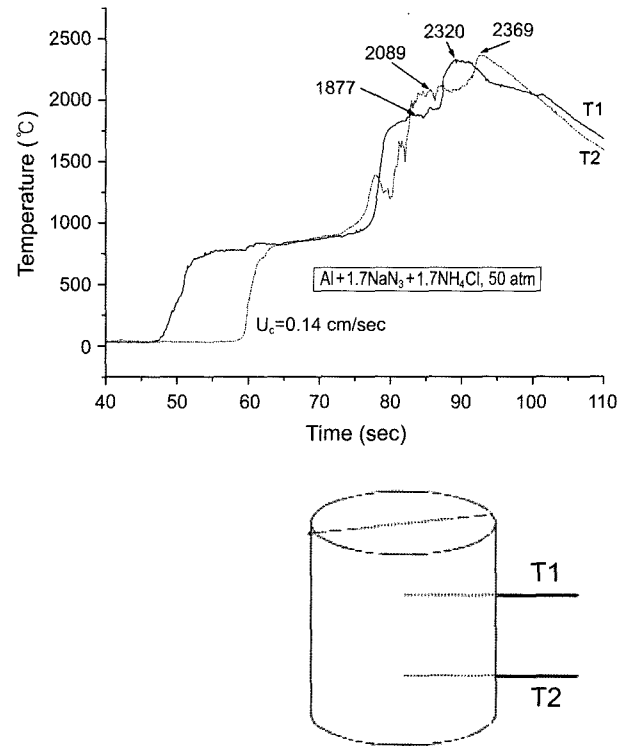
3. 결과 및 고찰

Table 2는 AlN의 최적조건을 얻기 위해 실험한 과정을

**Table 2.** The Combustion Possibility and Product at Different Composition and Pressure

Composition (wt%)	Pressure	Combustion (O,X)	Product
Al+1.0NaN <sub>3</sub> +1.0NH <sub>4</sub> Cl	10	X	
Al+1.0NaN <sub>3</sub> +1.0NH <sub>4</sub> Cl	20	X	
Al+1.0NaN <sub>3</sub> +1.0NH <sub>4</sub> Cl	30	X	
Al+1.0NaN <sub>3</sub> +1.0NH <sub>4</sub> Cl	40	X	
Al+1.0NaN <sub>3</sub> +1.0NH <sub>4</sub> Cl	50	X	
Al+0.5NaN <sub>3</sub> +0.5NH <sub>4</sub> Cl	50	X	
Al+1.7NaN <sub>3</sub> +1.7NH <sub>4</sub> Cl	50	O	AlN, Al
Al+2.0NaN <sub>3</sub> +1.7NH <sub>4</sub> Cl	50	X	
Al+2.0NaN <sub>3</sub> +2.0NH <sub>4</sub> Cl	50	X	
40Al+60AlN	10	X	
40Al+60AlN	20	X	
40Al+60AlN	30	X	
40Al+60AlN	40	X	
40Al+60AlN	50	X	
40Al+60AlN	60	O	AlN, Al
35Al+60AlN	60	O	AlN, Al
30Al+70AlN	60	O	AlN, Al
25Al+75AlN	60	O	AlN
25Al+70AlN+5NH <sub>4</sub> Cl	60	O	AlN, Al
30Al+65AlN+5NH <sub>4</sub> Cl	60	O	AlN, Al
35Al+60AlN+5NH <sub>4</sub> Cl	60	O	AlN

반응여부에 따라 생성된 반응산물을 표로 나타내었다. 표에서 알 수 있듯이 초기 압력이 낮을 때는 반응이 되지 않고, 적어도 50기압 이상이 되어야 반응이 일어남을 알 수 있다. 또한 내부기압이 60기압일때 회색제 AlN가 보충되어야만 되고, 순수한 AlN을 제조하기 위해서는 질소 보충첨가제인 NH<sub>4</sub>Cl이 첨가되어야 함을 알 수 있다. Fig. 3은 Al:NaN<sub>3</sub>:NH<sub>4</sub>Cl=1:1.7:1.7이고 반응기내 N<sub>2</sub> 압력이 50기압일 때의 반응온도 profile이다. 이 그림에 의하면 점화는 약 50초 후에 이루어지며, 연소반응은 약 80초 이후에 이루어지고, 연소온도는 약 2000~2400°C인 것으로 나타났다. 한편 본 연구에서 AlN를 합성하기 위해 질소분위기에서 순수 Al만을 반응시켰을 때는 반응기내의 질소압력과는 상관없이 원하는 수준의 AlN의 합성이 어려웠다. 따라서 좀 더 효율적으로 순수 AlN을 합성하기 위해 NaN<sub>3</sub>와 NH<sub>4</sub>Cl을 첨가하였다. NaN<sub>3</sub>은 첨가제로서 반응시 낮은 온도에서 분해하여 펠렛 내에서 질소를 공급하여 효율적인 질화반응에 도움을 주며, 분해 시 펠렛에 많은 기공을 제공하므로 펠렛 안으로 질소의 침투를 용이하게 하는 효과를 가지고 있다. 또한 NH<sub>4</sub>Cl은 NaN<sub>3</sub>와 마찬가지로 낮은 온도에서 분해하여 펠렛 내에 많은 기공

**Fig. 3.** Temperature profile of combustion reaction (Al+1.7NaN<sub>3</sub>+1.7NH<sub>4</sub>Cl, 50 atm, pellet size = 30 mmφ).

을 제공해 주며, NaN<sub>3</sub>로부터 분해된 Na의 위험성을 감소시키기 위해 첨가되었다. 즉 NaN<sub>3</sub>의 분해로 생긴 기화 Na와 NH<sub>4</sub>Cl의 분해로 생긴 기화 Cl이 서로 반응하여 안정한 NaCl의 염을 생성하게 되며 이때 최종적으로 물로 침출하여 제거하게 된다. 반응생성물을 관찰한 결과, 바깥부분은 흰색이었으며, 중심부분은 회색을 나타내었다. 즉 바깥부분은 AlN이 합성되었음을 나타내고 있으며, 중심부분의 회색부분은 합성된 AlN과 용융 Al이 함께 혼재하고 있음을 나타내고 있다. 따라서 바깥부분은 질소의 원활한 공급으로 AlN이 합성되었지만 중심부분은 질소가스의 확산 지연으로 완전한 반응이 이루어지지 않음을 보인다. 이때 제조된 반응물의 위치에 따른 XRD 분석결과는 Fig. 4와 같다. 그림에서 볼 수 있듯이 생성물은 내부는 (a)와 같이 미반응 Al과 AlN이 혼재되어 있으며, 외부는 순수 AlN만 생성됨을 보인다. 이와같은 현상은 이미 언급한 질소가스의 확산현상으로 설명되고, 또한 Fig. 3에서 알 수 있듯이 반응온도가 약 2300°C이상 상승한 결과와 연관된다. 즉 AlN의 융점은 2150°C로써 반응중 그 이상의 온도에서 합성된 AlN이 재분해 됨으로 중앙부분에 미반응 Al이 혼재하는 것으로 보인다. 또한 표면부분이 중앙부분보다 양호한 질화반응을 나타내고 있는 이유는 펠렛의 표면부분은 중앙부분보다 상대적으로 주위로의 복사열 방출로 인해 반응온도가 낮아지므로 AlN

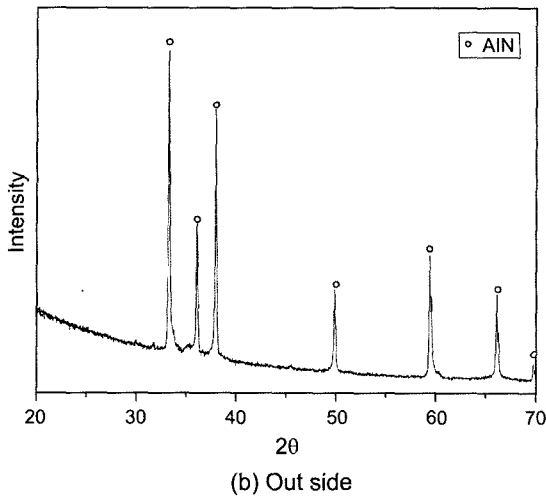
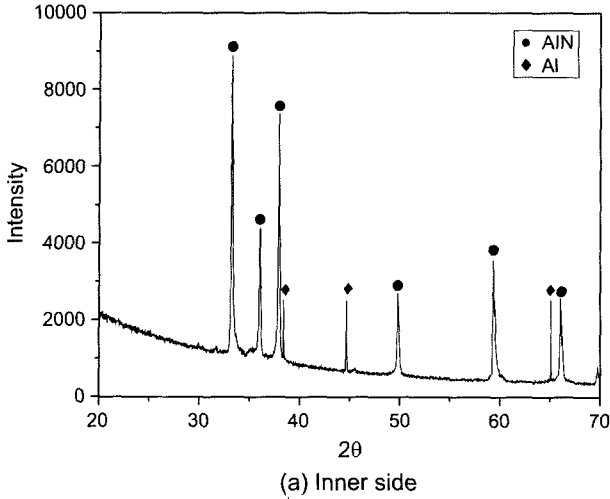


Fig. 4. XRD pattern of product (Al+1.7NaN<sub>3</sub>+1.7NH<sub>4</sub>Cl, 50 atm, pellet size = 30 mmφ).

의 분해가 없으므로 순수 AlN만 생성됨을 보인다. 따라서 본 연구에서는 반응온도를 조절하기 위하여 희석제로 AlN 분말을 첨가하여 실험하게 되었다.

Fig. 5는 희석제 AlN을 첨가하므로 좀더 높은 질화율을 가진 AlN을 합성할 때 온도 profile이다. 실험조건은 질소 분위기에서 Al:AlN=40:60이었으며, 반응기내 질소 압력은 60 atm이었다. 그림에서 보면, 반응온도가 Fig. 3에서 보다 더 낮아졌음을 알 수 있는데, 이는 AlN이 희석제로 작용하여 반응온도를 낮추었기 때문이다. 또한 반응온도의 상승이 앞선 Fig. 3과는 다른 형태를 나타내고 있음을 알 수 있는데, 이 실험에서는 NaN<sub>3</sub>나 NH<sub>4</sub>Cl과 같은 첨가제가 없기 때문에 이들의 분해로 인한 연소온도의 변화가 없고 오직 질화반응에 의한 발열반응만을 나타내기 때문이다.

Fig. 6은 60 atm의 일정 질소 압력에서, Al:AlN=x:100-x일 때 x의 변화에 따른 연소온도 및 연소속도의 변화를

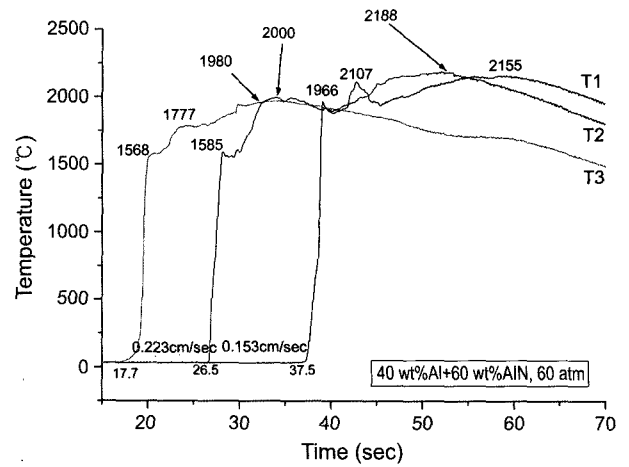


Fig. 5. Temperature profile of combustion reaction (40 wt% Al+60 wt%AlN, 60 atm, pellet size = 30 mmφ).

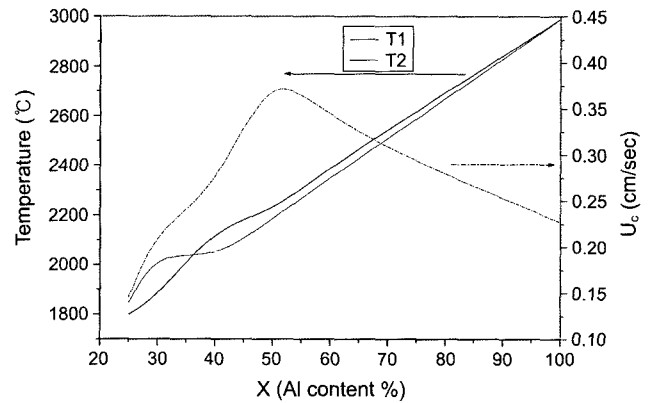


Fig. 6. Effect of Al content on the combustion temperature and velocity (xwt%Al+(100-x)wt%AlN, 60 atm, pellet size = 30 mmφ).

나타낸 것이다. 그림에서 볼 수 있듯이, Al의 함량이 많아질수록 반응온도는 상승하였으며, Al의 함량이 100%일 때는 반응온도가 너무 높아 온도측정이 불가능하였다. 또한 Al의 함량이 20%일 경우 반응이 일어나지 않았고 대략 Al의 함량이 25 wt%일 때 질소압력 60 atm에서 가연한계로 나타났다. 또한 Al의 함량이 25, 35 wt%일 경우 육안으로 관찰했을 때 반응생성물에 용융 Al이 보이지 않았고, 그 이상에서는 Al의 함량이 증가할수록 중심부분에 용융 Al이 더 많이 존재함을 알 수 있었다. 또한 서로 다른 위치에 장착된 두 쌍의 열전대를 이용하여 연소속도를 측정하였는데, 그림에서와 같이 Al의 함량이 약 50 wt%일 때 연소파의 전파속도가 가장 높고, 그 이상이나 이하로 갈수록 낮아짐을 알 수 있었다.

Fig. 7은 60기압 질소분위기에서 70%AlN과 30 wt%Al의 반응조건의 연소온도 profile을 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있듯이 반응온도는 위치에 따라 1868, 1906,

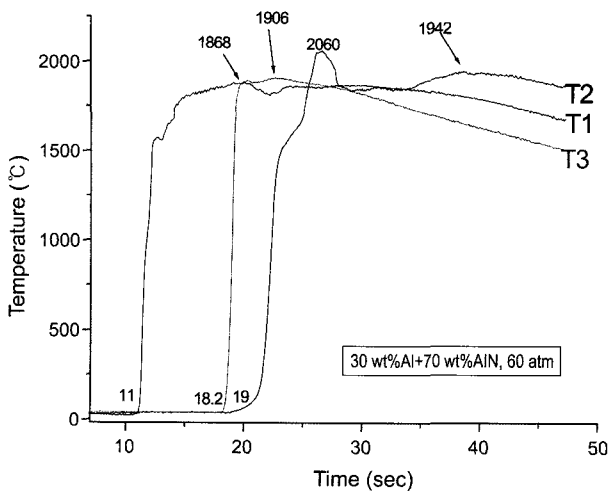


Fig. 7. Temperature profile of the combustion reaction (30 wt% Al+70 wt%AlN, 60 atm, pellet size = 30 mmφ).

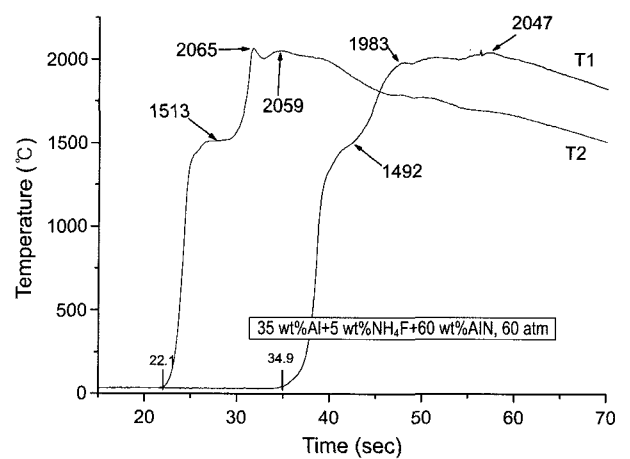
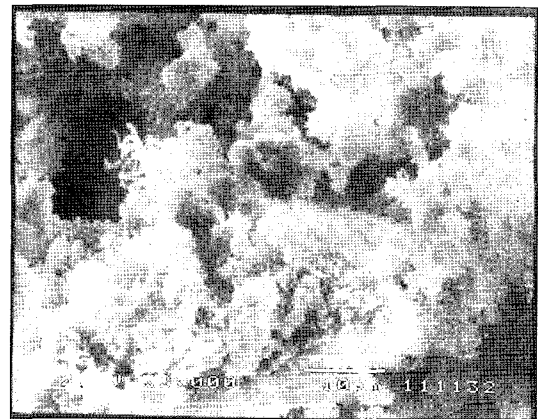


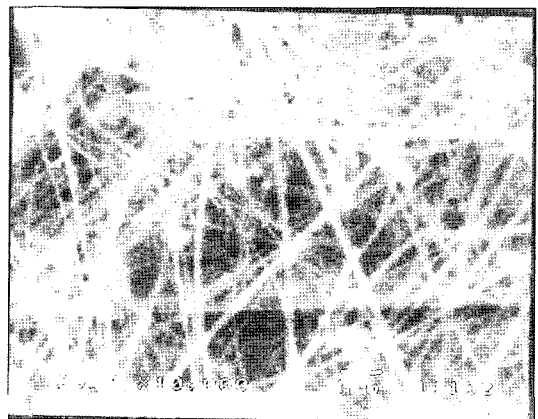
Fig. 8. Temperature profile of the combustion reaction (35 wt% Al+60 wt%AlN+5 wt%NH<sub>4</sub>Cl, 60 atm, pellet size = 30 mmφ).

2060°C를 나타내고 있다. 전체적으로 반응온도의 형태는 고온에서 오랜 시간 지속되는 완만한 냉각속도의 경향을 나타내고 있는데, 이는 오랜 시간동안의 질화반응 지속을 의미하는 것이다. 또한 펠렛의 중심부에 위치한 T1과 T2의 경우 T2와 같은 높이의 표면부분에 위치한 T3 보다 완만한 냉각속도를 가지고 있음을 알 수 있다. T3의 경우 표면부분에 위치하고 있기 때문에 복사열로 인한 열손실 때문에 냉각속도가 중심부보다 빠르게 되는 것이다. 또 T2와 T3의 경우 같은 높이에 위치하고 있음에도 불구하고 서로 다른 연소온도 형태를 나타내고 있고, T1과 T2의 경우 같은 중심부에 있음에도 불구하고 역시 서로 다른 연소온도 형태를 나타내고 있다. 이와같은 현상은 SHS 공정을 이용한 질화물 합성에 꽤 중요한 의미를 부여하는데, 이렇게 서로 다른 연소온도 형태를 나타내는 이유는 SHS의 불안전 연소파의 하나인 spin 연소의 영향으로 사료된다. 즉 위에서 연소파가 전파되어 내려오면서 표면부터 연소합성이 진행되며, 연소파가 다시 중앙 부분으로 전파되는 것으로 사료된다. 즉 T1의 경우 바로 윗부분에서 점화되어 내려오기 때문에 spin 연소와는 관계가 없지만, 연소파가 밑으로 전파되면서 차츰 spin 연소의 형태를 나타내게 되어 같은 높이일지라도 표면부분에 위치한 T3가 먼저 승온하게 된다. 그리고 표면부분부터 연소되어 중앙부분에 연소파가 전파되면서 중앙부분은 연소되기 이전에 어느 정도 예열의 효과를 받게 된다. 따라서 같은 높이일지라도 T3는 급격히 연소온도가 올라가는 반면 T2는 보다 완만한 연소온도 형태를 나타내게 되고 연소온도도 더 높아지는 것을 알 수 있다. 또한 같은 중앙부분에 위치하였다 하더라도 spin 연소의 영향을 받지 않은 T1보다 spin 연소의 영향을 받은 T2가 더 높은 연소온도를 나타내게 되는 것이다.

Fig. 8은 첨가제로서 NH<sub>4</sub>Cl만을 첨가하였을 경우 연소



(a) Out side



(b) Inner side

Fig. 9. SEM micrographs of reaction product: (a) outer region and (b) inner region (35 wt%Al+60 wt%AlN+5 wt% NH<sub>4</sub>Cl, 60 atm, pellet size = 30 mmφ).

온도 profile이다. 그림에서 볼 수 있듯이 반응온도는 매우 높았으며, 반응생성물은 펠렛 내부에 큰 기공이 생겼

으며 그 기공주위에 AlN whisker가 생성됨을 관찰 할 수 있었다. 이때 반응산물에 대한 위치에 따른 현미경사진을 Fig. 9에 나타내었고, 이 그림에 의하면 표면 부분에 생성된 AlN과 중심부위의 기공 주위에 생성된 AlN whisker의 모양을 보인다. 따라서 (a)의 표면부분의 일반적인 분말 형태는 LS(Liquid-Solid) 성장기구에 의해 생성됨을 알 수 있으며, (b)의 중심부분의 섬유형태의 AlN은 VLS(Vapor-Liquid-Solid) 성장기구에 의해 성장됨을 알 수 있었다.

#### 4. 결 론

일정압력(60 atm)의 질소분위기에서 순수(99.0%) Al 분말을 사용하여 AlN 분말 또는 휘스커를 합성할 수 있었다. 본 연구에서는 첨가제와 희석제에 따른 생성물이 조사되어졌는데, 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

1. 첨가제로 1.7 molNaN<sub>3</sub>와 1.7 molNH<sub>4</sub>Cl의 존재하에서는 완전한 AlN 합성반응은 이루어지지 않았다.
2. Al-AlN-NH<sub>4</sub>Cl 반응계에서 60 atm의 일정한 질소 분위기하에서 완전한 AlN을 얻기 위한 조성비는 35%:60%:5%이었다.
3. 연소반응에서 이상적인 연소온도는 1800°C 이하였고, 그 이상의 연소온도에서는 이미 합성된 AlN의 재분해로 인해 반응생성물에 용융 Al이 존재함을 알 수 있었다.
4. 첨가제로서 NH<sub>4</sub>Cl의 존재하에서 중앙부분에서는 VLS 성장기구에 의한 AlN whisker가 생성되었으며, 표면부분에서는 LS 성장기구에 의한 분말이 생성됨을 알 수 있었다.

#### REFERENCES

1. A. W. Weimer and W. G. Moore, "Rapid Process for Manufacturing Aluminum Nitride Powder," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77** [1] 3-18 (1994).
2. C. A. Slack, "Nonmetallic Crystal with High Thermal Conductivity," *J. Phys. Chem. Solid*, **34** 321-35 (1973).
3. W. Werdecker and F. Aldinger, "Aluminum Nitride an Alternative Ceramic Substrate for High Powder Application in Microcircuits," *IEEE Trans. Compon. Hybrids, Manuf. Technol.*, **CHMT-7** [4] 399-404 (1984).
4. N. Kuramoto and H. Taniguchi, "Transparent AlN Ceramics," *J. Mater. Sci. Lett.*, **3** 471-74 (1984).
5. Y. Kurokawa, K. Utsumi, H. Takamizawa, T. Kamata, and S. Noguchi, "AlN Substrate with High Thermal Conductivity," *IEEE Trans. Compon. Hybrids, Manuf. Technol.*, **CHMT-8** [2] 247-52 (1985).
6. L. M. Sheppard, "Aluminum Nitride : A Versatile but Challenging Material," *J. Am. Ceram. Soc. Bull.*, **69** [11] 1801-12 (1990).
7. J. M. Haussonne, J. Lostec, and S. Sadou, "A New Synthesis Process for AlN," *J. Am. Ceram. Soc. Bull.*, **72** [5] 84-90 (1993).
8. B. Forslund and J. Zheng, "Carbothermal Synthesis of Aluminum Nitride at Elevated Nitrogen Pressure : Part 2. Effect of Process Parameter on Particle Size and Morphology," *J. Mater. Sci.*, **28** 3132-36 (1993).
9. A. G. Merzhanov, "Reviews : Fundamentals, Achievements, and Perspectives for Development of Solid-Flame Combustion," *Russ. Chem. Bull.*, **46** 1 (1997).
10. A. G. Merzhanov, "Self-Propagating High Temperature Synthesis : Twenty Years of Research and Findings," (1989).
11. J. Kiser and R. M. Spriggs, "Soviet SHS Technology : A Potential U. S. Advantage in Ceramics," *Ceram. Bull.*, **68** [6] 1165-67 (1989).
12. M. H. Ryu, J. H. Lee, C. W. Won, and H. Nersisyan, "Synthesis and Characteristics of LiCoO<sub>2</sub> Powders Prepared by SHS Process(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [5] 388-94 (2004).
13. I. H. Song, J. Y. Yun, and H. D. Kim, "Fabrication of Porous MoSi<sub>2</sub> Material for Heating Element through Self-Propagating High Temperature Synthesis Process(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [1] 62-8 (2004).
14. K. R. Han, D. I. Kang, and C. S. Kim, "Preparation of B<sub>4</sub>C-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Composite Powder by Self-Propagation High Temperature Synthesis(SHS) Process Under High Pressure(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **40** [1] 18-23 (2003).
15. K. S. Yun, J. H. Lee, H. Nersisyan, C. W. Won, and H. S. Jung, "Preparation of α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> Powder in Reaction System Containing Molten Salt by SHS-Part 1. Synthesis of Powder(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [3] 235-41 (2004).