(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2010-0066543
(43) 공개일자 2010년06월17일

(51) Int. Cl.
B22F 1/00 (2006.01) *B22F 9/30* (2006.01)
C22C 1/04 (2006.01) *H01B 1/02* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2010-7007436
(22) 출원일자(국제출원일자) 2008년09월05일
심사청구일자 2010년04월06일
(85) 번역문제출일자 2010년04월06일
(86) 국제출원번호 PCT/US2008/075349
(87) 국제공개번호 WO 2009/032984
국제공개일자 2009년03월12일
(30) 우선권주장
60/967,873 2007년09월07일 미국(US)

(71) 출원인
이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 캄파니
미합중국 데라웨아주 (우편번호 19898) 윌밍톤시 마아켓트 스트리이트 1007
(72) 발명자
글릭스만, 호워드, 데이비드
미국 27707 노스 캐롤라이나주 더햄 콜빌 로드 4106
디에머, 주니어, 러쎌, 버트럼
미국 19803 델라웨어주 윌밍톤 매트슨 코트 6
코커, 존
영국 에이번 배드민턴 혹스버리 업톤 샌드피츠 레인 2에이
(74) 대리인
김영, 양영준, 양영환

전체 청구항 수 : 총 24 항

(54) 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소 합금 분말

(57) 요 약

은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 제조하는 방법 및 세라믹 압전 소자에서의 이들 분말의 사용이 개시된다.

특허청구의 범위

청구항 1

은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하며, 은을 포함하지 않은 원소가 Au, Bi, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Ge, Hg, In, Ir, Mn, Mo, Ni, Pd, Pb, Pt, Re, Rh, Ru, Sb, Sn, Ti, W, Zn 중 적어도 2가지의 원소를 포함하는, 다-원소(multi-element)의 미세하게 분할된 합금 분말.

청구항 2

은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 제조하는 방법으로서,

a. 열 휘발성(thermally volatilizable) 용매 중에서, 열 분해성(thermally decomposable)인 은 함유 화합물과 은 비-함유이고 열 분해성인 적어도 2가지의 추가 금속 화합물의 혼합물의 용액을 형성하는 단계;

b. 담체 가스 내에 분산된, 단계 A로부터의 용액의 미세하게 분할된 액적들로 본질적으로 이루어진 에어로졸을 형성하는 단계 - 상기 액적의 농도는 액적들의 충돌 및 후속하는 유착이 액적 농도의 10% 감소로 이어지는 농도 미만임 - ;

c. 은 함유 화합물 및 은 비-함유 화합물의 분해 온도를 초과하지만 생성되는 다-금속(multi-metallic) 합금의 융점 미만인 작동 온도로 에어로졸을 가열하는 단계 - 상기 가열에 의해 (1) 용매가 휘발되며, (2) 은 함유 화합물 및 은 비-함유 화합물이 분해되어 미세하게 분할된 입자들을 형성하고, (3) 입자들이 합금을 형성하며 조밀화됨 - ;

d. 입자들을 포함하는 에어로졸을 입자들 상으로 어떠한 물도 응축시키지 않는 수집 온도로 급랭(quenching)시키는 단계; 및

e. 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 담체 가스, 반응 부산물, 및 용매 휘발 생성물로부터 분리하는 단계

의 순차적 단계들을 포함하는 방법.

청구항 3

제2항에 있어서, 작동 온도는 600℃ 내지 1500℃인 방법.

청구항 4

제2항에 있어서, 은 함량은 50% 초과인 방법.

청구항 5

제2항에 있어서, 은을 포함하지 않은 원소는 Au, Bi, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Ge, Hg, In, Ir, Mn, Mo, Ni, Pd, Pb, Pt, Re, Rh, Ru, Sb, Sn, Ti, W, Zn 중 적어도 2가지의 원소를 포함하는 방법.

청구항 6

제2항에 있어서, 담체 가스는 공기인 방법.

청구항 7

제2항에 있어서, 담체 가스는 다-금속 입자들 내에 포함된 금속과 반응하지 않는 불활성 가스인 방법.

청구항 8

제7항에 있어서, 담체 가스는 질소인 방법.

청구항 9

제2항에 있어서, 담체 가스는 환원 가스인 방법.

청구항 10

제2항에 있어서, 담체 가스는 최대 4%의 수소 가스를 함유하는 질소 가스인 방법.

청구항 11

제2항에 있어서, 급랭 가스는 공기인 방법.

청구항 12

제2항에 있어서, 급랭 가스는 다-금속 입자들 내에 포함된 금속과 반응하지 않는 불활성 가스인 방법.

청구항 13

제7항에 있어서, 급랭 가스는 질소인 방법.

청구항 14

제2항에 있어서, 담체 가스 및 급랭 가스는 환원 가스인 방법.

청구항 15

제12항에 있어서, 담체 가스 및 급랭 가스는 최대 4%의 수소 가스를 함유하는 질소 가스인 방법.

청구항 16

제2항에 있어서, 공-용매(co-solvent)가 환원제로서 작용하도록 단계 a에서 첨가되는 방법.

청구항 17

제16항에 있어서, 공-용매 환원제는 1 내지 5개의 탄소를 갖는 유기 화합물인 방법.

청구항 18

제16항에 있어서, 공-용매 환원제는 알코올인 방법.

청구항 19

제14항에 있어서, 공-용매는 용액의 약 1 부피% 내지 약 50 부피%의 양으로 존재하는 방법.

청구항 20

제2항에 있어서, 삼종-금속(tri-metallic) 합금이 형성되며, 은을 포함하지 않은 원소들 중 하나는 팔라듐이고, 다른 하나의 은을 포함하지 않은 원소는 Au, Bi, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Ge, Hg, In, Ir, Mn, Mo, Ni, Pb, Pt, Re, Rh, Ru, Sb, Sn, Ti, W, Zn 중 하나인 방법.

청구항 21

제9항에 있어서, 삼종-금속 합금이 형성되며, 은을 포함하지 않은 원소들 중 하나는 팔라듐이고, 다른 하나는 백금인 방법.

청구항 22

제2항에 있어서, 미세하게 분할된 은 함유 다-금속 입자들의 고도 결정질(highly crystalline) 합금을 제조하기 위해, 단계 C의 (3)에서 입자들이 조밀화되고 고도 결정질로 제조되는 방법.

청구항 23

압전 세라믹 재료 상에 전도체 막을 형성하기에 적합한 잉크 또는 페이스트의 형태로 제조되며, 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소 합금 분말을 포함하는 전도체 조성물.

청구항 24

은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소 합금 분말을 포함하는 내부 전극을 구비하는 세라믹 압전 소자.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소(multi-element)의 미세하게 분할된 합금 분말의 제조에 관한 것이다. 특히, 본 발명은 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 제조하기 위한 공정 및 세라믹 압전 소자(ceramic piezoelectric device)에서의 이들 분말의 사용에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 금속 및 금속 합금 분말은, 특히 전자 산업 및 치과 산업에서 많은 중요한 용도를 갖는다. 은 및 팔라듐의 혼합물 및 합금이 하이브리드 집적 회로(hybrid integrated circuit), 다층 세라믹 커패시터(multilayer ceramic capacitor), 액추에이터(actuator) 및 기타 용도를 위한 전도체 조성물에서 널리 사용된다. 은 및 팔라듐의 합금은 금 또는 백금 조성물보다 저렴하며, 대부분의 유전체(dielectric) 및 저항(resistor) 시스템과 양립할 수 있다. 은에 팔라듐을 첨가하는 것은 납땜에 대한 회로의 양립성을 크게 향상시키고, 유전체 소성 온도(firing temperature)와의 양립성을 위해 은의 융점을 상승시키며, 유전체 특성의 저하 및 단락(shorting)을 유발할 수 있는 은 이동(migration)의 문제를 감소시킨다.

[0003] 은 및 팔라듐의 이종-금속(bi-metallic) 혼합물 및 합금 분말은 다층 세라믹 소자, 세라믹 압전 액추에이터 및 기타 세라믹 소자를 위한 내부 전극 재료에 사용된다. 세라믹 압전 액추에이터는, 예를 들어 밸브 등과 같은 기계적 구성요소를 작동시키기 위해서 사용된다(예컨대, 미국 특허 제6,411,018호 참조). 세라믹 압전 액추에이터에 사용되는 전형적인 조성물(예컨대, 미국 특허 제6,700,311호 참조)은 세라믹을 소결시키는 데 사용되는 온도보다 더 높은 융점을 갖는 70% Ag 30% Pd이다. 소자의 내부 전극으로 의도되는 후막 잉크(thick film ink)의 금속 성분의 특성이 매우 중요한데, 이는 금속 분말과 잉크의 유기 매체 사이 및 잉크 자체와 주위 유전체 재료 사이의 양립성이 요구되기 때문이다. 전도성 후막 페이스트(paste)의 원하는 품질을 최대화하기 위해, 직경이 대략 0.1 내지 1.0 마이크로미터로 균일한 크기이고, 순수하고, 결정질이며,응집되지 않은 금속 입자가 요구된다.

[0004] 압전 세라믹은 힘이 가해질 때 전압을 발생시키며, 전압이 인가될 때 변위 또는 힘을 생성한다. 이는 압전 세라믹을 액추에이터 또는 센서로서 매우 유용하게 한다. 세라믹 압전액추에이터(piezoactuator)는 다수의 얇은 세라믹 압전활성(piezoactive) 층으로 구성된다. 각각의 층은 전기적으로 접촉 및 구동될 수 있는 내부 전극층에 의해 다른 층으로부터 분리된다. 이러한 유형의 압전액추에이터는 본질적으로 PZT 세라믹(즉, $Pb(Ti_xZr_{1-x})O_3$)으로 구성되며, 여기서 내부 전극이 각각의 층 사이에 장착된 상태에서 $0.4 < x < 0.6$이다. 이들 층은 동시-소성되어(co-fired), 역 압전 효과(inverse piezoelectric effect)의 결과로서 외부 전압의 인가에 응답하여 팽창 또는 압축을 겪는 스택(stack)을 형성한다. 전형적인 구동 전압은 0.1% 내지 0.3%의 최종 변동에서 100 내지 300 볼트이다.

[0005] 압전 세라믹 본체 내의 내부 전극은 세라믹을 소결시키는 데 필요한 온도보다 더 높은 융점을 갖는 재료로 제조된다. 또한, 내부 전극의 재료는 산화에 안정적이다.

[0006] 내부 전극에 은을 사용하는 것의 한 가지 단점은, 동시-소성 공정에서의 소결 중에, 은이 전극으로부터 이웃하는 절연 층으로 확산되어, 세라믹 특성을 저하시키고, 압전 효과를 감소시키며, 절연 저항을 감소시켜 절연 파괴(electrical breakdown)를 초래할 수 있다는 것이다. 30% Pd를 사용하는 것의 다른 단점은 팔라듐 비용이 여전히 상대적으로 높다는 것이다. Pd의 양을 감소시키는 것은 은의 추가적인 증가를 야기하며, 이는 바람직하지 못한 확산 효과를 더욱 유발한다.

[0007] 금속 분말을 제조하기 위해 현재 사용되는 많은 방법이 있다. 이 방법들은 화학적 환원 방법, 물리적 공정, 예컨대 분무(atomization) 또는 분쇄(milling), 열 분해, 및 전기화학적 공정을 포함한다. 이들 공정은 제어하기에 매우 어렵고 응집되는 불규칙한 형상의 입자들을 제공하는 경향이 있다. 또한, 이들 공정은 2가지 초과의 원소를 함유하는 합금 입자를 제조할 수 없거나, 입자들의 크기가 매우 크고 합금 비를 제어하기에 매우 어렵다.

[0008] 에어로졸 분해(aerosol decomposition) 공정은 전구체 용액(precursor solution)의 분말로의 변환을 포함한다. (본 명세서에 참고로 포함된 미국 특허 제6,338,809호를 참조한다.) 이러한 공정은 액적의 발생, 가열된 반응기 내로의 가스에 의한 액적의 운반, 증발에 의한 용매의 제거, 다공성 고체 입자를 형성하기 위한 염의 분해, 및 그 후의 완전히 조밀한 구형의 순수한 입자를 제공하기 위한 입자의 조밀화를 포함한다. 액적 대 액적 또는 입자 대 입자의 상호작용이 없도록 하는, 그리고 담체 가스와의 액적 또는 입자의 화학적으로 상호작용이 없도록 하는 조건이 있다.

발명의 내용

[0009] 본 발명은, 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하며 은을 포함하지 않은 원소가 Au, Bi, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Ge, Hg, In, Ir, Mn, Mo, Ni, Pd, Pb, Pt, Re, Rh, Ru, Sb, Sn, Ti, W, Zn 중 적어도 2가지의 원소를 포함하는, 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말인 재료에 관한 것이다.

[0010] 본 발명은 또한 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 제조하는 방법에 관한 것으로서,

[0011] a. 열 휘발성(thermally volatilizable) 용매 중에서, 열 분해성(thermally decomposable)인 은 함유 화합물과 은 비-함유이고 열 분해성인 적어도 2가지의 추가 금속 화합물의 혼합물의 용액을 형성하는 단계;

[0012] b. 담체 가스 내에 분산된, 단계 A로부터의 용액의 미세하게 분할된 액적들로 본질적으로 이루어진 에어로졸을 형성하는 단계 - 상기 액적의 농도는 액적들의 충돌 및 후속하는 유착이 액적 농도의 10% 감소로 이어지는 농도 미만임 - ;

[0013] c. 은 함유 화합물 및 은 비-함유 화합물의 분해 온도를 초과하지만 생성되는 다-금속(multi-metallic) 합금의 융점 미만인 작동 온도로 에어로졸을 가열하는 단계 - 상기 가열에 의해 (1) 용매가 휘발되며, (2) 은 함유 화합물 및 은 비-함유 화합물이 분해되어 미세하게 분할된 입자들을 형성하고, (3) 입자들이 합금을 형성하며 조밀화됨 - ;

[0014] d. 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 담체 가스, 반응 부산물, 및 용매 휘발 생성물로부터 분리하는 단계를 포함한다.

[0015] 본 발명은 또한, 압전 세라믹 재료 상에 전도체 막을 형성하기에 적합한 잉크 또는 페이스트의 형태로 제조되며 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소 합금 분말을 포함하는 전도체 조성물에 관한 것이다.

[0016] 본 발명은 또한 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소 합금 분말을 포함하는 내부 전극을 구비하는 세라믹 압전 소자에 관한 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0017] 정의

[0018] 은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물을 위한 용매와 관련하여 본 명세서에서 사용되는 바와 같이, "휘발성"이라는 용어는 용매가 가장 높은 작동 온도에 도달하는 시간까지 증발에 의해서 및/또는 분해에 의해서든지 간에 증기 또는 가스로 완전하게 변환되는 것을 의미한다.

[0019] 은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물과 관련하여 본 명세서에서 사용되는 바와 같이, "열 분해성"이라는 용어는 화합물이 가장 높은 작동 온도에 도달하는 시간까지 금속 및 휘발된 부산물로 완전하게 분해되는 것을 의미한다. 예를 들어, $AgNO_3$, $Co(NO_3)_2$, $Pd(NO_3)_2$는 분해되어 NO_x와 Ag 및 Pd 금속을 각각 형성한다.

[0020] 은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물:

[0021] 에어로졸을 형성하는 데 사용되는 담체 가스에 대해서 불활성인 한, 임의의 가용성 염이 본 발명의 방법에 사용될 수 있다. 예로는 금속 질산염, 인산염, 황산염, 아세트산염 등을 포함한다. 구체적인 예로는하기의 적합한 염을 포함한다: $AgNO_3$, Ag_3PO_4, Ag_2SO_4, $Pd(NO_3)_2$, $Pd_3(PO_4)_2$, $Pt(NO_3)_2$, $Co(NO_3)_2$, $Co(C_2H_3O_2)_2$, $Pb(NO_3)_2$ 등. 은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물은 0.2 몰/리터(mole/liter)만큼 낮은 농도로부터 위로는 특정 염의 용해도 한계 바로 아래까지의 농도로 사용될 수 있다. 대부분의 실시 형태에서, 농도는 약 0.2 몰/리터 초과 및 포화 상태의 약 90% 미만이다.

[0022] 일 실시 형태에서, 은의 공급원으로서 수용성 은 염 및팔라듐의 공급원으로서 수용성 팔라듐 염이 본 발명의 방법을 위해서 사용된다. 다른 실시 형태에서, 본 방법은 수성 또는 유기 용매 중에 용해된 유기금속(organometallic) 은, 팔라듐, 또는 혼합된 은 팔라듐 화합물과 같은 다른 용매-가용성 화합물을 이용하여 효과적으로 수행된다. 은을 포함하지 않은 원소의 매우 작은 콜로이드 입자가 또한 안정한 현탁물을 형성한다면 사용될 수 있다.

[0023] 작동 변수: 본 발명의 방법은 하기의 기본적인 기준이 충족되는 한, 매우 다양한 작동 조건 하에서 수행될 수 있다:

[0024] 1. 액체 용매의 제거 이전의 고체의 침전을 방지하기 위해, 에어로졸 내의 가용성 은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물의 농도는 공급 온도에서의 포화 농도보다 낮아야 하며, 바람직하게는 포화 농도보다 적어도 10% 낮아야 한다.

[0025] 2. 에어로졸 내의 액적의 농도는, 액적들의 충돌 및 후속하는 유착이 액적 농도의 10% 감소로 이어지는 농도 미만이 되도록, 충분하게 낮아야 한다.

[0026] 3. 반응기의 온도는 형성된 합금의 융점보다 낮아야 한다.

[0027] 가용성은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물의 포화점 미만에서 작동하는 것이 필수적이기는 하지만, 이들의 농도는 다른 경우에 공정의 작동에서 중요하지는 않다. 은 함유 및 은 비-함유 화합물의 상당이 더 낮은 농도가 사용될 수 있다. 그러나, 일반적으로 더 높은 농도는 입자의 더 빠른 생성 속도를 제공한다.

[0028] 본 발명을 위한 에어로졸을 제조하기 위해, 연무기(nebulizer), 충돌식 연무기(collison nebulizer), 초음파 연무기(ultrasonic nebulizer), 진동 오리피스 에어로졸 발생기(vibrating orifice aerosol generator), 원심 분무기(centrifugal atomizer), 2-유체 분무기(two-fluid atomizer), 전기스프레이 분무기(electrospray atomizer) 등과 같은 액적 발생을 위한 종래의 장치 중 임의의 것이 사용될 수 있다. 분말의 입자 크기는 발생되는 액적 크기의 직접 함수이다. 에어로졸 내의 액적의 크기는 본 발명의 방법의 실시에서 중요하지는 않다. 그러나, 전술한 바와 같이, 액적의 개수가 입자 크기 분포를 확장시킬 수 있는 과도한 유착을 초래할 만큼 많지 않아야 한다는 것이 중요하다.

[0029] 또한, 주어진 에어로졸 발생기에서, 은 함유 화합물 및 은 비-함유 금속 화합물의 용액의 농도는 입자 크기에 영향을 미친다. 특히, 입자 크기는 농도의 세제곱근의 근사 함수이다. 따라서, 은 함유 및 은 비-함유 화합물의 농도가 높을수록, 침전되는 금속 합금의 입자 크기가 커진다. 입자 크기를 크게 변화시키고자 한다면, 다른 에어로졸 발생기를 사용하여야 한다.

[0030] 은 함유 및 은 비-함유 금속 화합물을 위한 용매에 대해 그리고 화합물 자신에 대해 불활성인 사실상 임의의 기상 물질이 본 발명의 실시를 위한 담체 가스로서 사용될 수 있다. 적합한 기상 물질의 예는 공기, 질소, 산소, 증기, 아르곤, 헬륨, 이산화탄소 등이다. 일 실시 형태에서, 공기가 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 제조하기 위한 담체 가스이며, 여기서 은을 포함하지 않은 원소는 금속 합금을 형성하는 작동 온도보다 낮은 온도에서 분해성인 금속 산화물들을 형성한다. 1200℃ 미만의 온도에서, 이들 원소의 예는 Pt 및 Pd를 포함한다.

[0031] 다른 실시 형태에서, 질소가 1200℃ 미만의 온도에서 안정한 금속 산화물을 형성하는 원소를 위한 담체 가스이다. 이들 원소의 예는 Co, Mo, Fe, Mn, Cu, Ni 등을 포함한다. 몇몇 최종 용도에서, 합금 분말 내의 금속 산화물의 존재는 허용될 수 있거나 바람직할 수 있다. 다른 실시 형태에서, 수소 또는 일산화탄소와 같은 환원 가스가 질소와 함께 블렌딩되어 담체 가스를 형성할 수 있다. 환원 가스는 최대 2, 4, 6, 8 또는 10 몰%의 양으로 존재할 수 있다.

[0032] 공-용매(co-solvent)가 전구체 용액에 첨가될 때 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말을 제조하기 위한 공정이 또한 수행될 수 있으며, 여기서 은을 포함하지 않은 원소는 Au, Bi, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Ge, Hg, In, Ir, Mn, Mo, Ni, Pd, Pb, Pt, Re, Rh, Ru, Sb, Sn, Ti, W, Zn 중 적어도 2가지의 원소를 포함한다. 적합한 공-용매는 금속 산화물의 환원제로서 작용하고, 기화될 수 있으며, 담체 가스에 대해 불활성이고, 주요 용매와 혼화성이며, 1 내지 5개 탄소의 탄소수를 갖는 것들이다. 적합한 공-용매의 예는 알코올, 에스테르, 에테르, 케톤 등을 포함한다. 이들 공-용매는 1 부피% 내지 50 부피%, 바람직하게는 5 부피% 내지 20 부피%의 양으로 용액에 존재한다.

[0033] 본 발명의 방법이 수행될 수 있는 온도 범위는 매우 넓고, 은 함유 화합물 또는 은 비-함유 금속 화합물의 분해

온도 중 어느 것이든 더 높은 온도로부터 형성된 다-원소 합금의 융점까지의 범위이다.

[0034] 에어로졸을 가열하는 데 사용되는 장치의 유형은 그 자체로 중요한 것은 아니며, 직접 또는 간접 가열 중 어느 하나가 사용될 수 있다. 예를 들어, 튜브로(tube furnace)가 사용될 수 있거나, 연소 화염 내에서의 직접 가열이 사용될 수 있다. 은 및 은을 포함하지 않은 적어도 2가지의 원소를 함유하는 형성된 다-원소 합금 분말의 융점보다 높지 않아야 한다는 것이 중요하다.

[0035] 반응 온도에 도달하고 입자들이 합금될 때, 입자들이 급랭되고(quenched), 담체 가스, 반응 부산물 및 용매 휘발 생성물로부터 분리되며, 분말이 필터, 사이클론(cyclone), 정전 분리기(electrostatic separator), 백(bag) 필터, 필터 디스크 등과 같은 하나 이상의 장치에 의해 수집된다. 반응이 완료되면, 가스는 담체 가스, 금속 화합물의 분해 생성물 및 용매 증기로 구성된다. 따라서, 담체 가스로서 질소를 사용하여 수성 은 질산염, 팔라듐 질산염, 및 코발트 질산염으로부터 은 팔라듐 코발트 합금 입자를 제조하는 경우에, 본 발명의 방법으로부터의 유출 가스는 질소 산화물, 물 및 질소 가스로 구성될 것이다.

[0036] 본 발명의 합금 분말은 고도 결정질(highly crystalline)이다. 미소결정(crystallite) 크기는 200 옹스트롬 초과이며, 전형적으로는 400 옹스트롬 이상을 초과한다.

[0037] [실시예]

[0038] 하기의 실시예는 본 발명의 이해를 돕기 위해 제공된 것이며, 본 발명의 범주를 어떠한 방식으로도 제한하고자 하는 것이 아니다. 분말 특징의 상세 사항은 표 1에서 확인된다. 합금 조성물은 중량%로 제시되어 있다. 엥겔스만(Englesmann)에 의해 제조된 탭 밀도 기계(tap density machine)를 사용하여 탭 밀도를 측정하였다. 마이크로메리틱스 트라이스타(Micromeritics Tristar)를 이용하여 BET 방법으로 표면적을 측정하였다. 마이크로메리틱스 아큐피크(Micromeritics Accupyc) 1330을 사용하여 He 비중측정(pycnometry) 밀도를 측정하였다. 리가쿠 미니플렉스(Rigaku Miniflex) x-선 회절계(diffractometer)를 사용하여 미소결정 크기 및 % 금속 산화물을 측정하였다. 마이크로메리틱스 S3500을 사용하여 입자 크기 데이터를 측정하였다.

[0039] 실시예 1

[0040] 본 실시예는 은과 팔라듐과 백금을 85 중량% 은, 10 중량% 팔라듐, 및 5 중량% 백금의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 제조를 설명한다. 은 질산염 결정을 물 중에서 용해시키고 이어서 팔라듐 질산염 용액과 그 다음 백금 질산염 용액을 첨가함으로써 전구체 용액을 제조하였다. 용액 중의 은, 팔라듐 및 백금의 총량은 10 중량%였으며, 이때 상대 비율은 은과 팔라듐과 백금이 완전히 합금될 경우 입자 내에서 85/10/5의 Ag/Pd/Pt 합금이 얻어지도록 하였다. 이어서, 담체 가스로서 공기를 사용하고 1.6 MHz에서 작동하는 9개의 초음파 변환기를 가진 초음파 발생기를 사용하여 에어로졸을 발생시켰다. 이러한 에어로졸을 이어서 임팩터(impactor)를 통해 보내고, 그 다음 900℃로 설정된 구역을 가진 3 구역 노로 보냈다. 노로부터 빠져 나온 후에, 공기를 사용하여 에어로졸 온도를 급랭시키고, 은과 팔라듐과 백금을 85 중량% 은, 10 중량% 팔라듐, 및 5 중량%의 비로 함유하는 조밀하고, 구형 형상을 가지며, 미세하게 분할된 합금 분말을 백 필터 내에 수집하였다.

[0041] 실시예 2

[0042] 은과 팔라듐과 백금을 85 중량% 은, 14 중량% 팔라듐, 및 1 중량% 백금의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다.

[0043] 실시예 3

[0044] 은과 팔라듐과 백금을 85 중량% 은, 14 중량% 팔라듐, 및 1 중량% 구리의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다.

[0045] 실시예 4

[0046] 은과 팔라듐과 백금을 82 중량% 은, 17 중량% 팔라듐, 및 1 중량% 구리의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스 및 급랭 가스 모두에 대해 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다.

[0047] 실시예 5

[0048] 은과 팔라듐과 백금을 78 중량% 은, 20 중량% 팔라듐, 및 2 중량% 구리의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스 및 급랭 가스 모두에 대해 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는,

실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다.

[0049] 실시예 6 및 7

[0050] 은과 팔라듐과 아연을 상이한 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다. 이들 조건 하에서, x-선 회절에 의해 보여지는 바와 같이 일부 아연 산화물이 존재하였다.

[0051] 실시예 8 및 10

[0052] 은과 팔라듐과 철을 상이한 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스로서 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다. 이들 조건 하에서, x-선 회절에 의해 보여지는 바와 같이 일부 철 산화물이 존재하였다.

[0053] 실시예 9 및 11

[0054] 은과 팔라듐과 철을 상이한 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스로서 및 급랭 가스로서 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다. 이들 조건 하에서, x-선 회절에 의해 보여지는 바와 같이 일부 철 산화물이 존재하였지만, 그 양은 실시예 8 및 10에서 보여지는 것보다 적었다.

[0055] 실시예 12

[0056] 은과 팔라듐과 몰리브덴을 75 중량% 은, 15 중량% 팔라듐, 및 10 중량% 몰리브덴의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스 및 급랭 가스 모두에 대해 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다.

[0057] 실시예 13 및 14

[0058] 은과 팔라듐과 망간을 상이한 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스로서 및 급랭 가스로서 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다. 이들 조건 하에서, x-선 회절에 의해 보여지는 바와 같이 일부 망간 산화물이 존재하였다.

[0059] 실시예 15

[0060] 은과 아연과 백금을 89 중량% 은, 10 중량% 아연, 및 1 중량% 백금의 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스 및 급랭 가스 모두에 대해 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다. 이들 조건 하에서, x-선 회절에 의해 보여지는 바와 같이 일부 아연 산화물이 존재하였다.

[0061] 실시예 16 및 17

[0062] 은과 망간과 백금을 상이한 비로 함유하는 다-원소의 미세하게 분할된 합금 분말의 샘플을, 1000℃ 담체 가스로서 및 급랭 가스로서 질소 가스를 사용한 것을 제외하고는, 실시예 1에서 설명된 것과 동일한 조건을 사용하여 제조하였다. 이들 조건 하에서, x-선 회절에 의해서 보여지는 바와 같이 일부 망간 산화물이 존재하였다.

표 1

[0063]

실시예	재료 유형	% Ag	금속 1	% 금속 1	금속 2	% 금속 2	담체 가스	급랭 가스	노 온도 ℃
1	Ag/Pd/Pt	85	Pd	10	Pt	5	공기	공기	900
2	Ag/Pd/Pt	85	Pd	14	Pt	1	공기	공기	900
3	Ag/Pd/Cu	85	Pd	14	Cu	1	공기	공기	900
4	Ag/Pd/Cu	82	Pd	17	Cu	1	질소	질소	1000
5	Ag/Pd/Cu	78	Pd	20	Cu	2	질소	질소	1000
6	Ag/Pd/Zn	75	Pd	20	Zn	5	공기	공기	900
7	Ag/Pd/Zn	85	Pd	14	Zn	1	공기	공기	900
8	Ag/Pd/Fe	80	Pd	15	Fe	5	질소	공기	1000
9	Ag/Pd/Fe	80	Pd	15	Fe	5	질소	질소	1000
10	Ag/Pd/Fe	70	Pd	20	Fe	10	질소	공기	1000
11	Ag/Pd/Fe	70	Pd	20	Fe	10	질소	질소	1000
12	Ag/Pd/Mo	75	Pd	15	Mo	10	질소	질소	1000
13	Ag/Pd/Mn	70	Pd	20	Mn	10	질소	질소	1000
14	Ag/Pd/Mn	80	Pd	15	Mn	5	질소	질소	1000
15	Ag/Zn/Pt	89	Zn	10	Pt	1	질소	질소	1000
16	Ag/Mn/Pt	89	Mn	10	Pt	1	질소	질소	1000
17	Ag/Mn/Pt	84	Mn	15	Pt	1	질소	질소	1000

[0064]

실시예	탭 밀도 g/ml	표면적 m^2/g	He 비중 측정 g/ml	미소결정 크기 (Å)	% 금속 산화물	d10 마이크로미터	d50 마이크로미터	d90 마이크로미터	d95 마이크로미터
1	1.54	0.72	8.36	657	nd	0.67	1.25	2.43	3.03
2	1.46	0.78	8.09	479	nd	0.66	1.21	2.40	3.01
3	2.07	0.78	8.21	525	nd	0.62	1.11	2.34	2.96
4	4.00	0.66	8.64	694	nd	0.61	1.06	2.27	2.91
5	4.04	0.64	8.92	673	nd	0.60	1.01	2.10	2.64
6	2.48	0.79	9.08	557	1.7	0.69	1.22	2.49	3.16
7	1.62	0.74	8.50	593	0.2	0.73	1.48	2.74	3.33
8	3.04	0.79	9.98	514	1.1	0.62	0.97	1.85	2.29
9	2.95	0.85	9.48	526	0.9	0.58	0.87	1.72	2.16
10	3.34	0.68	8.91	479	2.2	0.64	0.97	1.78	2.17
11	3.71	0.74	8.94	474	1.6	0.64	0.97	1.76	2.14
12	4.36	0.78	9.01	660	nd	0.62	1.03	1.92	2.33
13	4.17	0.79	9.40	518	0.8	0.60	0.97	2.07	2.62
14	4.17	0.87	10.04	545	0.2	0.57	0.86	1.72	2.18
15	4.21	0.70	9.82	608	1.7	0.62	1.04	1.97	2.42
16	4.55	0.59	9.66	677	0.9	0.61	0.97	1.85	2.28
17	3.85	0.66	9.67	666	1.1	0.61	0.96	1.79	2.19