(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2014년05월29일
(11) 등록번호 10-1401352
(24) 등록일자 2014년05월23일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C04B 35/10 (2006.01) *C04B 35/624* (2006.01)
C04B 35/622 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2013-0033121
(22) 출원일자 2013년03월27일
심사청구일자 2013년03월27일
(56) 선행기술조사문헌
KR1020120021581 A
KR1020020089633 A
KR101157460 B1
KR1020060108909 A

(73) 특허권자
한국기계연구원
대전광역시 유성구 가정북로 156 (장동)
(72) 발명자
구혜영
경남 창원시 마산회원구 석전남8길 39, 3층 (석전동)
양상선
경남 창원시 성산구 대암로 253, 103동 1902호 (성주동, 일신대동프리빌리지아파트)
윤중열
경남 창원시 성산구 대암로 253, 107동 1103호 (성주동, 일신대동프리빌리지아파트)
(74) 대리인
안승태

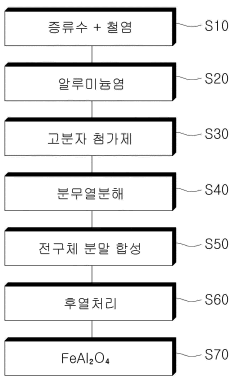
전체 청구항 수 : 총 10 항 심사관 : 김란

(54) 발명의 명칭 **분무열분해 공정에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법**

(57) 요 약

입자의 형상이 균일하고, 응집이 일어나지 않으며, 입자 형태의 조절이 용이하고 금속 성분의 조성을 자유롭게 조절할 수 있는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법을 제공한다. 그 제조방법은 증류수에 철염 및 알루미늄염을 용해한 다음, 증류수에 겔화를 유도하기 겔화 유도제를 첨가하여 분무용액을 제조하고, 제조된 분무용액을 분무열분해법을 이용하여 분말을 합성한 후 포집하여, 포집된 분말을 열처리하는 단계를 포함한다.

대 표 도 - 도1



이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	100373222_55590
부처명	지식경제부
연구사업명	소재원천기술개발사업
연구과제명	하이브리드 나노 촉매 직접 코팅 소재 기술(3/4)
기 여 율	100/100
주관기관	한국기계연구원 부설 재료연구소
연구기간	2012.06.01 ~ 2013.05.31

특허청구의 범위

청구항 1

증류수에 Fe염, Mn염, Mg염, Ni염, Co염, Cu염 중에서 선택된 어느 하나의 염을 용해하는 단계;

상기 증류수에 알루미늄염을 용해하는 단계;

상기 증류수에 겔화를 유도하기 위하여 겔화 유도제를 첨가하여 분무용액을 제조하는 단계;

상기 제조된 분무용액을 분무열분해법을 이용하여 분말을 합성하는 단계; 및

상기 합성된 분말을 후열처리하는 단계를 포함하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 겔화 유도제는 에틸렌글리콜 또는 폴리에틸렌글리콜 중에 선택된 어느 하나인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 3

제2항에 있어서, 상기 겔화 유도제는 구연산을 더 포함하는 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 4

제1항에 있어서, 상기 Fe염은 페릭 나이트레이트(Ferric Nitrate, $Fe(NO_3)$)인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 5

제1항에 있어서, 상기 알루미늄염은 알루미늄 나이트레이트노나하이드레이트(Aluminum Nitrate Nonahydrate, $Al(NO_3)_3 9H_2O$)인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 6

제2항 또는 제3항의 어느 한 항에 있어서, 상기 분무용액의 Fe염과 알루미늄염으로 이루어진 금속염의 전체농도는 0.5M이고, 액적이 가열로 내에서 0.9초의 체류시간이었을 때, 상기 겔화 유도제를 이루는 물질은 각각 0.1M 이상 1M 이하인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 7

제2항 또는 제3항의 어느 한 항에 있어서, 상기 분무용액의 Fe염과 알루미늄염으로 이루어진 금속염의 전체농도는 0.5M이고, 액적이 가열로 내에서 0.9초의 체류시간이었을 때, 상기 겔화 유도제를 이루는 물질로서 CA와 EG는 각각 0.3M인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 8

제1항에 있어서, 상기 합성된 분말은 속이 충진된 구형인 전구체인 것을 특징으로 하는 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 9

제1항에 있어서, 상기 3원계 알루미늄 산화물은 $M_xAl_2O_4$이며, 이때 M은 Fe, Mn, Mg, Ni, Co, Cu 중에서 선택된 어느 하나인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

청구항 10

제1항에 있어서, 상기 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말은 크기가 0.5~2㎛인 것을 특징으로 하는 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 담체로 사용되는 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법에 관한 것으로, 보다 상세하게는 분무열분해 공정에서 겔화 유도제를 이용하여 3원계 알루미늄 산화물로 이루어진 분말을 제조하는 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 배기가스 필터 등에 적용되는 하이브리드 복합 분말은 크게 담체인 코어 분말과 담체에 고착되는 촉매 분말로 나눌 수 있다. 코어 분말은 고온에서 분말 사이의 소결이 일어나지 않고 촉매 분말과의 접촉 특성을 고려하여 선정하는 것이 중요하다. 또한, 촉매 분말은 균일하고 미세한 입자로 합성되어 코어 분말에 고착되어야 한다. 이는 하이브리드 분말을 필터 등에 적용하였을 때, 높은 배기가스 온도에 의해 코어 분말끼리 소결되면, 촉매 분말의 일부가 코어 분말 내부로 잔존하게 되어 촉매의 역할을 하지 못하게 되기 때문이다. 또한, 촉매를 담지할 때 촉매가 불균일하게 분포하게 되고 일부는 응집이 일어나기도 하며, 촉매를 사용하는 중에 촉매 간에 소결로 인하여 촉매가 커져서 촉매반응을 위한 면적이 감소한다.

[0003] 이에 따라, 상용의 세라믹 코어 분말을 이용하여 상기 조건을 만족하는 하이브리드 복합 분말에 대한 연구와 함께, 금속 산화물계의 조성 설계를 통해 위의 조건에 부합하는 코어 분말을 확보하기 위한 다양한 시도가 진행되고 있다. 최근에는 3원계 알루미늄 산화물을 코어 분말로 하였을 때, 고온에서 코어 분말 사이의 소결이 일어나지 않고 또한 촉매 분말과의 접촉 특성이 좋아 촉매 분말이 균일하고 미세한 입자 상태로 코어 분말에 고착되는 것으로 알려지고 있다. 이는 3원계 알루미늄 산화물이 고온에서 안정하고 촉매 분말과 결합에너지가 높아서 고온에서 촉매 분말의 소결을 억제하기 때문이다.

[0004] 한편, 종래에 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조할 수 있는 방법은 고상반응법, 기상반응법 및 액상반응법 등 다양한 방법이 채용되어 왔다. 분무열분해법은 액상법과 기상법이 함께 적용되는 공정으로, 원하는 조성의 원료를 용매에 녹여 용액 상태로 만든 후, 초음파 액적발생장치에 의해 만들어진 하나의 액적이 하나의 분말로 합성되는 공정이다. 하지만, 아직도 입자의 형상이 균일하고, 응집이 일어나지 않으며, 금속 성분의 조성을 자유롭게 조절할 수 있는 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 상기 분무열분해법으로 제조하는 최적의 방법이 구현되지 못하고 있는 실정이다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0005] 따라서 본 발명이 해결하려는 과제는 분무열분해법을 이용하여 입자의 형상이 균일하고, 응집이 일어나지 않으며, 금속 성분의 조성을 자유롭게 조절할 수 있는 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법을 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

[0006] 상기 과제를 해결하기 위한 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법에 의하면, 증류수에 철염을 용해하는 단계, 상기 증류수에 알루미늄염을 용해하는 단계, 상기 증류수에 입자형태를 제어하기 위해 고분자 첨가제를 첨가하여 분무용액을 제조하는 단계, 상기 제조된 분무용액을 분무열분해법을 이용하여 분말을 합성하는 단계 및 상기 합성된 분말을 후열처리하는 단계를 포함한다.

[0007] 여기서, 상기 고분자 첨가제는 구연산(CA, $C_6H_8O_7$)과 에틸렌글리콜 (EG, $C_2H_6O_2$)이 각각 적정 농도로 혼합된 형태가 바람직하고 에틸렌글리콜 이외에도 PEG중에 선택된 어느 하나가 적용될 수 있다. 상기 구연산과 에틸렌글리콜을 각각 0.1M 이상 1M 이하인 것이 바람직하다. 또한, 상기 철염은 페릭 나이트레이트 (Ferric nitrate, $Fe(NO_3)_3$)이고, 상기 알루미늄염은 알루미늄 나이트레이트논하이드레이트(Aluminum Nitrate Nonhydrate,

$Al(NO_3)_3 9H_2O$)일 수 있다.

[0008] 본 발명의 제조방법에 있어서, 상기 분무용액의 금속염의 전체농도는 0.5M이고, 상기 분무열분해법은 액적이 가열로 내에서 0.9초의 체류시간을 가지며, 상기 구연산과 에틸렌글리콜을 각각 0.1M 이상 0.5M 이하로 하였을 때, 상기 첨가제의 농도는 각각 0.3M인 것이 바람직하다. 또한, 상기 합성된 분말은 마이크론 크기의 응집이 없이 구형인 전구체인 것을 특징으로 한다.

[0009] 본 발명의 바람직한 실시예에 있어서, 상기 3원계 알루미늄 산화물은 $M_xAl_2O_4$이며, 이때 M은 Fe, Mn, Mg, Ni, Co, Cu 중에서 선택된 어느 하나인 것일 수 있다. 또한, 상기 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말은 크기가 0.5~2 ㎛인 것을 특징으로 한다.

발명의 효과

[0010] 본 발명의 분무열분해에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법에 따르면, 분무열분해 공정을 이용하여 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 합성함으로써, 입자의 형상이 균일하고 응집이 일어나지 않으며 입자 크기의 조절이 용이하고 촉매 분말과 결합 에너지가 높은 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조할 수 있다. 즉, 고온에서 코어 분말 사이의 소결이 일어나지 않고, 촉매 분말이 균일하게 코어 분말에 고착되며 고온에서 소결이 일어나지 않는 하이브리드 복합 분말을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0011] 도 1은 본 발명에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조하는 하나의 사례를 나타내는 흐름도이다.

도 2는 본 발명에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조하기 위한 분무열분해 공정을 개략적으로 표현한 도면이다.

도 3은 본 발명에 의한 분무열분해 공정을 통한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 합성기구를 나타내는 개념도이다.

도 4는 본 발명의 실험예들에 의한 고분자 첨가제 첨가량에 따른 $FeAl_2O_4$ 전구체의 SEM사진이다.

도 5는 본 발명의 실험예 2에 의해 제조된 전구체 분말을 질소분위기 하에서 700℃로 열처리된 $FeAl_2O_4$ 분말의 XRD 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0012] 이하 첨부된 도면을 참조하면서 본 발명의 바람직한 실시예를 상세히 설명한다. 다음에서 설명되는 실시예는 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 아래에서 상술되는 실시예에 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 실시예는 당 분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위하여 제공되는 것이다.

[0013] 본 발명의 실시예는, 분무열분해 공정을 이용하여 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 합성함으로써, 입자의 형상이 균일하고 응집이 일어나지 않으며, 입자 크기의 조절이 용이하고 금속 성분의 조성을 자유롭게 조절할 수 있으며 촉매 분말과 결합에너지가 높은 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 제조방법을 제시한다. 이를 위해, 먼저 코어 분말인 3원계 알루미늄 산화물에 대해 살펴보고, 이어서 분무열분해를 이용하여 3원계 알루미늄 산화물 분말을 제조하는 방법에 대해서 상세하게 설명할 것이다.

[0014] 배기가스 필터 등에 적용되는 하이브리드 복합 분말은 크게 담체인 코어 분말과 담체에 고착되는 촉매 분말로 나눌 수 있다. 코어 분말은 고온에서 분말 사이의 소결이 일어나지 않고 촉매 분말과의 접촉 특성을 고려하여 선정하는 것이 중요하다. 또한, 촉매 분말은 균일하고 미세한 입자로 합성되어 코어 분말에 고착되어야 한다. 이는 하이브리드 분말을 필터 등에 적용하였을 때, 높은 배기가스 온도에 의해 코어 분말이 소결되면, 촉매 분말의 일부가 코어 분말 내부로 잔존하게 되어 촉매의 역할을 하지 못하게 되기 때문이다. 게다가, 고온의 배기가스로 인하여 금속인 촉매, 예컨대 백금 촉매가 조대화되어 실질적으로 촉매의 역할을 하는 면적이 줄어드는 것을 방지하기 위함이다.

[0015] 백금 촉매와 각종 산화물 간의 계면에너지를 VASP(Vienna Abinitio Simulation Package)를 사용한 제일원리 계산을 통하여 수행한 결과, 스피넬(spinel)을 제외한 계의 부착에너지는 Pt/MgO에서 가장 작고, Pt/CuO,

Pt/TiO_2, Pt-γ-알루미나 순으로 증가하는 것을 확인하였다. 이를 통해 스피넬 계에서는 금속 성분이 Mg, Ni, Co, Mn, Cu, Fe 순으로 갈수록 부착에너지가 증가하여, 결과적으로는 Fe-Al-O 및 Mn-Al-O계와 같은 3원계 알루미늄 산화물이 가장 유망한 코어 분말으로 도출되었다.

[0016] 본 발명의 실시예는 상기 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조하는 데 분무열분해법을 이용하였다. 분무열분해법은 액상법과 기상법이 함께 적용되는 공정으로, 원하는 조성의 원료를 알콜이나 증류수와 같은 용매에 녹여 용액 상태로 만든 후, 초음파 액적발생장치를 이용하여 1~5㎛ 정도의 크기를 갖는 미세한 액적(液滴)으로 발생시킨다. 발생된 액적은 운반기체에 의해 관을 따라 가열로를 거치며 건조, 열분해, 결정화과정을 거쳐 하나의 분발로 합성되는 공정이다. 이처럼 초음파 액적발생장치에 의해 발생된 액적은 액적 내에 원하는 조성의 성분이 분자수준으로 고르게 분산되어 있기 때문에, 이를 사용한 분무열분해 공정은 다성분계 분말을 합성하는데 매우 유리한 공정이다.

[0017] 이 방법에 의하면, 응집이 없는 입자를 얻을 수 있고, 원료를 용액에 녹여서 적용시키기 때문에 각 금속 성분을 원하는 비율로 균일하게 혼합시킬 수 있다. 또한, 용액의 농도와 함께 반응기 온도와 운반유체의 유량의 조절에 따른 체류시간의 변화로 입자의 형태 및 크기를 조절할 수 있다. 용액 제조할 때 원하는 금속화합물의 조성 외에 다른 유기물질 등을 첨가시켜 액상에서의 용액을 조절함으로써, 입자의 형태 변화를 유도하여 최종 반응물을 합성하기 때문에 입자 형태나 입도 분포를 제어하는 데도 유리하다.

[0018] 이하에서는 분부열분해 공정을 이용하여 마이크론 크기의 구형의 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 합성하는 방법에 대하여 상세하게 살펴보기로 한다. 이때, 촉매는 백금 촉매, 그리고 코어 분말은 고온에서 분말의 소결이 일어나지 않으며 백금 촉매와의 접촉 특성이 가장 좋은 것으로 파악된 Fe-Al-O계 조성으로 $FeAl_2O_4$ 산화물 분말을 사례로 들어 살펴보기로 하겠다.

[0019] 도 1은 본 발명의 실시예에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조하는 하나의 사례를 나타내는 흐름도이다.

[0020] 도 1에 의하면, 먼저 분무용액을 제조하기 위해서, 증류수에 철염, 예를 들면 페릭 나이트레이트 (Ferric nitrate, $Fe(NO_3)_3$)를 넣는다(S10). 이어서, 알루미늄 염, 예를 들면 알루미늄 나이트레이트논하이드레이트 (Aluminum Nitrate Nonhydrate, $Al(NO_3)_3 9H_2O$)를 증류수에 용해시킨다(S20). 또한, 분무열분해 공정시 입자 내부가 빈 중공의 형태를 갖게 되는 단점을 보완하고자 입자 내부의 겔화를 유도하기 위해 겔화를 유도하기 위하여 겔화 유도제를 추가한다(S30). 상기 겔화 유도제는 에틸렌글리콜, 폴리에틸렌글리콜 등과 같은 고분자 물질이 단독을 사용된 것일 수 있으며, 경우에 따라 구연산과 상기 고분자 물질을 혼합하여 사용된 것일 수 있다.

[0021] 이렇게 제조된 분무용액은 분무열분해 한 후(S40), 전구체 분말을 합성한다(S50). 합성된 분말에 후열처리를 행하여(S60) 완성된 $FeAl_2O_4$ 산화물 분말을 얻는다(S70). 한편, 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말은 상기 철염을 망간염으로 대체하면 $MnAl_2O_4$, 마그네슘염으로 대체하면 $MgAl_2O_4$를 얻을 수 있다. 이와 같이 3원계 알루미늄 산화물은 $M_xAl_2O_4$이며, 이때 M은 Fe, Mn, Mg, Ni, Co, Cu 중에서 선택된 어느 하나일 수 있다. 본 발명에서는 상기 분무 용액은 금속염의 전체농도가 0.5M이 되도록 고정시키고 구연산과 에틸렌글리콜의 첨가량을 달리하면서 적정량을 파악하여 제조하였다. 이때, 구연산과 에틸렌글리콜의 각각의 농도는 0.01M 내지 1M이 적용되며, 특히 0.1 내지 0.5M가 바람직하다.

[0022] 만일, 구연산과 에틸렌글리콜을 0.1M 이하로 첨가될 경우, 건조 및 열분해 단계에서 입자 내부에서 용액의 점도가 충분히 증가되지 않아 겔(gel)화가 일어나지 않기 때문에 입자의 내 외부의 건조속도의 차이가 생기게 되며 이로 인해 입자내부가 충분히 석출되지 않고 이렇게 합성된 분말은 열처리 후 입자의 결정 성장이 제대로 형성되지 않게 된다. 또한 0.5M 이상 첨가한 경우, 과도한 고분자 첨가제로 용액의 점도가 상승하여 모체의 건조 및 열분해가 충분히 이루어지지 않아 원하는 결정성장이 충분히 이루어지지 않을 수 있다. 한편, 본 발명의 실시예에서는 고분자 첨가제로서 구연산과 에틸렌글리콜을 예로 들었으나, 본 발명의 범주 내에서 다른 물질, 예컨대 PEG(PolyEthylenGlycol)도 가능할 것이다.

[0023] 이하, 도 2에서는 분무열분해 공정에 대해서 상세하게 설명하기로 한다.

[0024] 도 2는 본 발명의 실시예에 의한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말을 제조하기 위한 분무열분해 공정을 개략적으로 표현한 도면이다.

[0025] 도 2에서, 분무열분해 장치(100)는 초음파 액적발생기(10)와, 액적의 건조 및 열분해를 위한 가열로(20)와, 입자를 포집하는 백필터(30)를 포함하여 이루어진다. 도 1에서 설명한 대로 제조된 분무용액(2)은 펌프(4)를 통해서 초음파 액적발생기(10)에 연속적으로 공급되어 미세한 액적(6)으로 변환된다. 변환된 액적(6)은 운반기체(carrier gas; 8)의 유량에 따라 유량계(12)에 의해 일정한 유속을 가지고 유로를 따라 가열로(20)로 이동하게 되며, 이때 가열로(20) 내부를 지나는 액적의 유속과 내부의 온도에 따라서 액적의 체류시간이 결정된다. 이렇게 합성된 입자는 백필터(30)에 포집되며, 배출되는 가스들은 배기관(40)을 통하여 빠져나가거나 응축된 가스는 액화되어 트랩(42)에서 포집된다.

[0026] 상기 체류시간은 액적의 건조, 열분해, 결정화 단계에 영향을 미치게 되므로, 이에 따라서 전구체 입자의 크기나 형태에 의해 달라질 수 있다. 본 발명에서는 분무열분해 장치의 가열로(20)는 히트 존(heat zone)이 60cm인 내부에 직경이 약 50㎜인 석영관을 이용하였으며, 합성온도를 900℃로, 유량을 20L/min으로 고정시킨 상태에서 고분자 첨가제의 농도를 달리하면서 첨가제 농도가 전구체 분말에 미치는 영향을 파악하였다.

[0027] 도 3은 본 발명에 의한 분무열분해 공정을 통한 3원계 알루미늄 산화물 코어 분말의 합성기구를 나타내는 개념도이다. 도시된 바와 같이, 액적 발생기(10)에서 발생된 액적은 분무열분해에 의해 건조되고 분해되는 과정에서 고분자 첨가제에 의해 액적의 점도가 상승하여 겔화 되고 이로 인해 액적의 내부와 외부의 석출속도를 조절하여 액적 내부가 충분히 석출되게 함으로써, 입자 내부가 보다 치밀하여 지고 열처리 후에도 초기입자 형태를 유지하는 마이크론 크기의 구형의 분말이 제조되고, 이를 열처리 과정을 통하여 평균 크기가 0.5~2㎛인 마이크론 크기의 3원계 알루미늄 산화물 분말을 얻을 수 있다. 위와 같은 열처리 후 마이크론 크기의 구형 입자는 본 발명의 3원계 코어 분말을 얻기 위한 전구체라고 한다.

[0028] 이하에서는 본 발명의 3원계 알루미늄 산화물의 코어 분말의 제조에 있어서, 중요한 요소인 유량변화 및 겔화 유도제의 첨가량에 따른 결과를 실험예들을 통하여 상세하게 설명하기로 한다.

[0029] <실험예 1>

[0030] 본 발명의 실험예 1은, 먼저 분무용액을 제조하기 위하여 양론비에 따라 증류수에 철염 중에 하나, 예를 들어 페릭 나이트레이트(Ferric Nitrate, $Fe(NO_3)$)를 넣는다. 이어서, 알루미늄 염의 하나, 예를 들어 알루미늄나이트레이트논하이드레이트(Aluminum Nitrate Nonhydrate, $Al(NO_3)_3 9H_2O$)를 증류수에 용해하였다. 이때, 페릭 나이트레이트(Ferric Nitrate, $Fe(NO_3)$와 알루미늄나이트레이트논하이드레이트(Aluminum Nitrate Nonhydrate, $Al(NO_3)_3 9H_2O$)의 전체 농도는 0.5M이었다. 동시에, 겔화를 유도하기 위하여 구연산(CA, $C_6H_8O_7$) 0.1M과 에틸렌글리콜(EG) 0.1M을 혼합하였다. 위와 같이 제조된 분무용액은 가열로(도 1의 20)의 히트 존(heat zone)이 60cm인 내부에 직경이 50㎜인 석영관을 이용하여 분무열분해 처리하였다. 가열로의 내부 온도는 900℃로 설정하고, 가열로 내의 체류시간은 0.9초였다. 이때, 생성되는 $FeAl_2O_4$ 코어 분말을 확인하였다.

[0031] <실험예 2>

[0032] 상기 실험예 1에서, 겔화를 유도하기 위하여 구연산 0.3M, 에틸렌글리콜 0.3M을 혼합한 것을 제외하고는 나머지는 실험예 1과 동일한 조건에서 생성되는 $FeAl_2O_4$ 코어 분말을 확인하였다. 이때, 가열로 내의 체류시간은 0.9초였다.

[0033] <실험예 3>

[0034] 상기 실험예 1에서, 겔화를 유도하기 위하여 구연산 0.5M, 에틸렌글리콜 0.5M을 혼합한 것을 제외하고는 나머지는 실험예 1과 동일한 조건에서 생성되는 $FeAl_2O_4$ 코어 분말을 확인하였다. 이때, 가열로 내의 체류시간은 0.9초였다.

[0035] <비교예 1>

[0036] 상기 실험예 1에서, 겔화 유도제를 투입하지 않고 나머지는 실험예 1과 동일한 조건에서 생성되는 $FeAl_2O_4$ 코어 분말을 확인하였다. 이때, 가열로 내의 체류시간은 0.9초였다.

[0037] 도 4는 각각 비교예 1과 본 발명의 실험예 1 내지 3에 의해 제조된 $FeAl_2O_4$ 전구체의 SEM 사진들이다. 구체적으로, 비교예의 사진 a는 겔화 유도제를 투입하지 않은 것이고, 실시예 1의 사진 b는 겔화 유도제로서 CA 0.1M, EG 0.1M, 실시예2의 사진 c는 겔화 유도제로서 CA 0.3M, EG 0.3M 및 실시예3의 사진 d는 겔화 유도제로서 CA

0.5M, EG 0.5M을 투입한 경우이다.

[0038] 도 4에서, 겔화 유도제를 첨가하지 않은 사진 a의 경우 겔화 유도제가 첨가된 사진 b, c 및 d와 달리 전구체 입자가 깨져 있는 형상을 확인할 수 있다. 이에 비해, 겔화 유도제가 첨가된 경우(사진 b~d) 전구체 입자가 구형을 잘 유지하였으며, 최적의 결정 특성을 보인 사진 c인 실시예 2의 경우 사진 b와 사진 d에 비해서도 입자가 보다 작고 균일함을 알 수 있다. 다시 말해, 최적의 상태인 실시예 2에 비해 입자가 작고 균일하지 않을지라도, 실시예 1 및 3 역시 실시예 2와 같이 구형을 유지하고 있어서, 본 발명이 구현하고자 하는 마이크론 크기의 구형 분말을 충분하게 얻을 수 있다.

[0039] 한편, 사진 b인 실시예 1의 경우, 겔화 유도제가 입자 내부의 겔화를 유도할 수 있는 충분한 양이 되지 않아 부분적으로 겔화 유도제를 첨가하지 않은 입자의 단점을 완벽하게 극복하지 못했으며, 사진 d인 실시예 3의 경우, 겔화 유도제가 과량 첨가되어 오히려 건조 및 열분해가 제대로 이루어지지 않아 내부가 치밀하지 않은 입자가 합성된 결과에 기인한다.

[0040] 도 5는 각각 비교예 1과 본 발명의 실험예 1 내지 3에 의해 제조된 전구체 분말을 환원분위기 하에서 700℃로 열처리된 $FeAl_2O_4$ 분말의 XRD 그래프들이다. 구체적으로, 비교예 1의 그래프 a는 겔화 유도제를 투입하지 않은 것이고, 실시예 1의 그래프 b는 겔화 유도제로서 CA 0.1M, EG 0.1M, 실시예2의 그래프 c는 겔화 유도제로서 CA 0.3M, EG 0.3M 및 실시예3의 그래프 d는 겔화 유도제로서 CA 0.5M, EG 0.5M을 투입한 경우이다.

[0041] 도 5에서, 겔화 유도제가 첨가되지 않은 입자의 경우인 그래프 a는 동일한 열처리 조건하에서도 원하는 결정성장을 보이지 않았다. 하지만, 겔화 유도제를 첨가한 입자의 경우인 그래프 b~d는 모두 $FeAl_2O_4$의 결정성을 보였다. 특히 최적의 첨가 농도인 CA 0.3M, EG 0.3M인 실험예 2의 경우인 그래프 c는 각각 0.1M과 0.5M이 첨가된 실험예 1 및 2의 입자에 비해 우수한 결정 특성을 보였다.

[0042] 이상, 본 발명은 바람직한 실시예를 들어 상세하게 설명하였으나, 본 발명은 상기 실시예에 한정되지 않으며, 본 발명의 기술적 사상의 범위 내에서 당 분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의하여 여러 가지 변형이 가능하다.

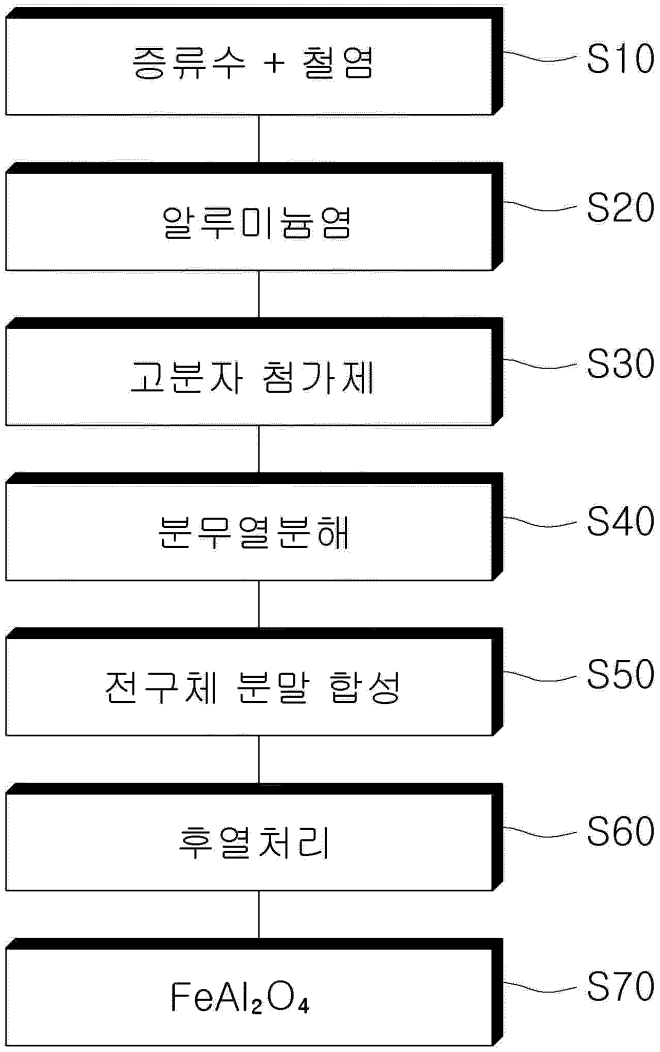
부호의 설명

[0043]

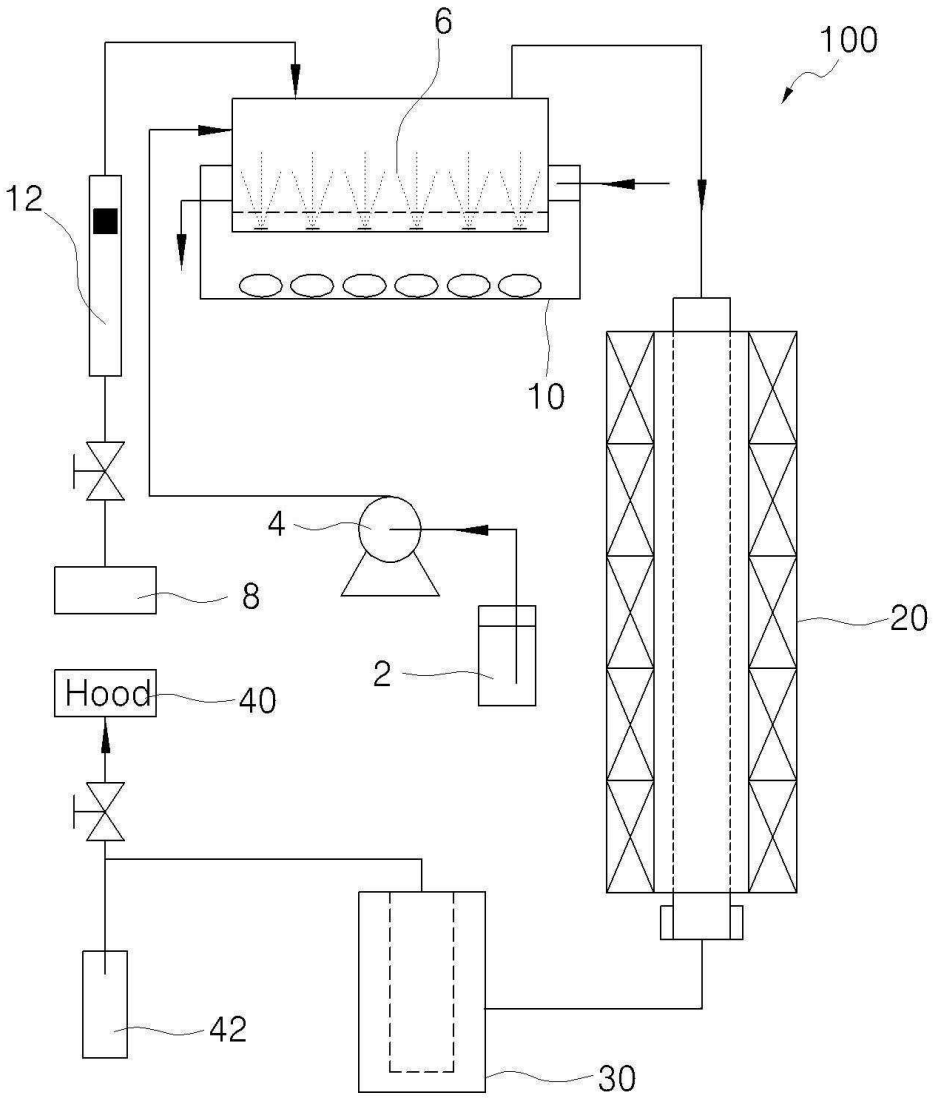
2; 분무용액	4; 펌프
6; 액적	8; 운반기체
10; 초음파 액적발생기	12; 유량계
20; 가열로	30; 백필터
40; 배기관	42; 트랩
100; 분무열분해 장치	

도면

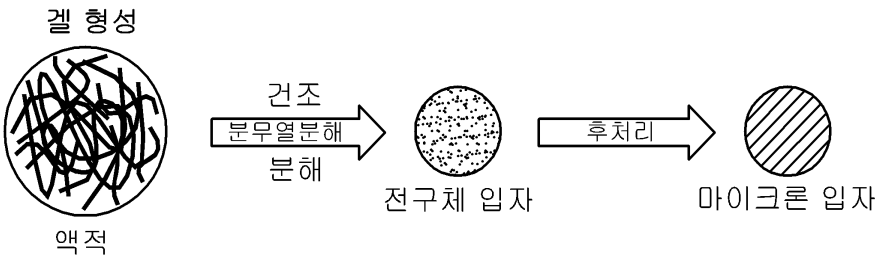
도면1


증류수 + 철염
S10
알루미늄염
S20
고분자 첨가제
S30
분무열분해
S40
전구체 분말 합성
S50
후열처리
S60
$FeAl_2O_4$
S70

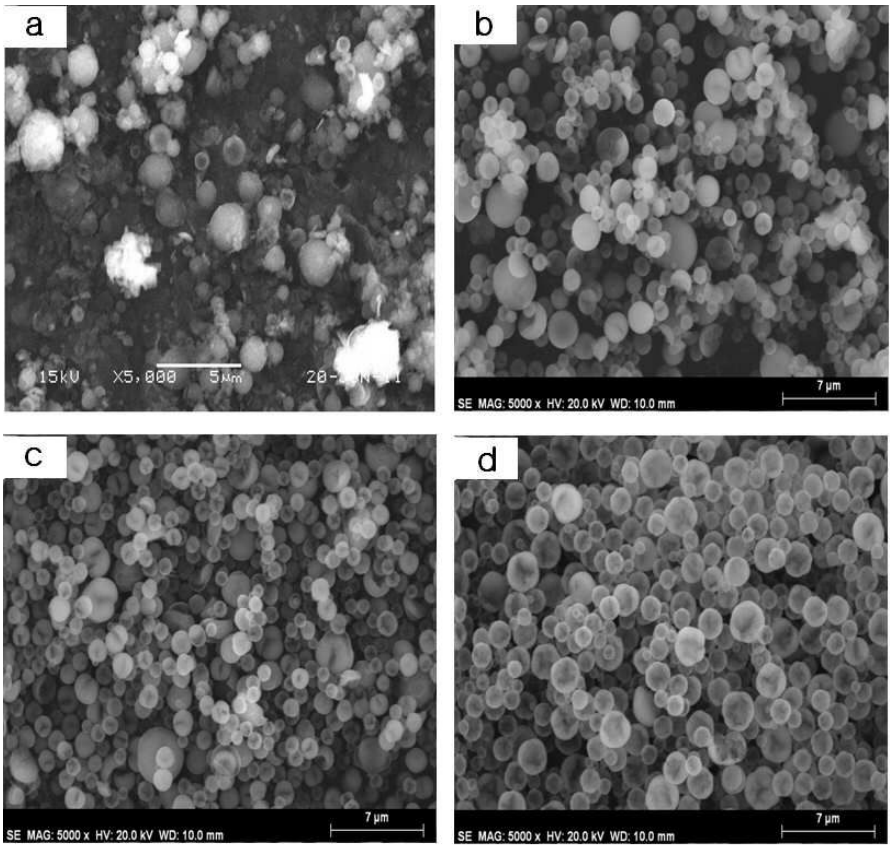
도면2


6
100
12
10
4
8
20
2
Hood
40
42
30

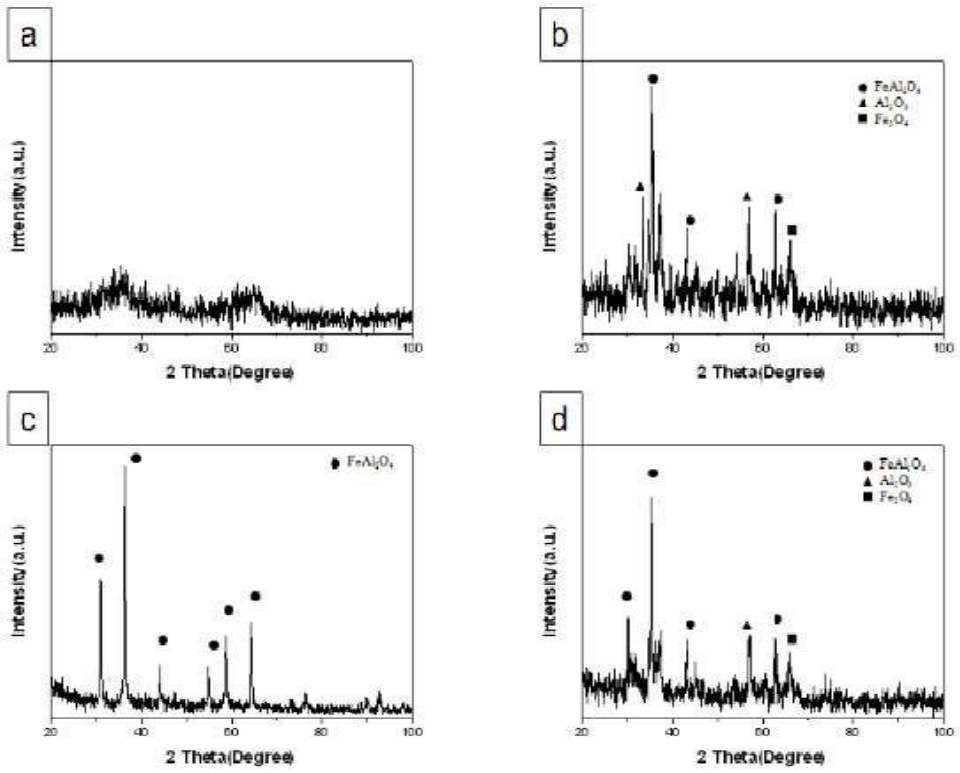
도면3


겔 형성
건조
분무열분해
분해
후처리
액적
전구체 입자
마이크론 입자

도면4


a
b
c
d
15kV X5,000 5μm
SE MAG: 5000 x HV: 20.0 kV WD: 10.0 mm
7 μm

도면5


a
b
c
d
Intensity (a.u.)
2 Theta(Degree)
20
40
60
80
100
$FeAl_2O_4$
Al_2O_3
Fe_2O_4