

## PZT 분말제조시 수열조건별 특성 연구: 반응온도, 광화제 및 반응시간의 영향

정성택 · 서경원<sup>†</sup>

아주대학교 화학 · 생물공학부  
(1996년 12월 16일 접수, 1997년 6월 13일 채택)

## Studies on Characteristics of Hydrothermal Conditions in Preparing PZT Powders: Effects of Reaction Temperature, Mineralizer and Reaction Time

Sung-Teak Jung and Kyung-Won Seo<sup>†</sup>

School of Chem. Eng. & Biotech., Ajou University, Suwon 441-749, Korea  
(Received 16 December 1996; accepted 13 June 1997)

### 요 약

본 연구에서는 수열합성법을 이용한 PZT(Lead Zirconate Titanate) 분말제조시 반응온도의 변화, 반응시간의 증감 및 광화제 첨가 등이 입자의 결정성, 입도분포와 평균입경에 미치는 영향을 조사하였다. 수열용액의 용해도를 증가시키기 위하여 KOH를 광화제로 첨가함으로써 130-220 °C의 반응온도범위와 100-200 psi의 압력범위에서 입방체 모양을 갖는 1-5 µm 크기의 PZT 결정분말을 제조할 수 있었다. 실험결과 온도가 증가함에 따라 핵생성 및 결정면의 발달이 빠르게 진행되었으며, 광화제 첨가량이 증가함에 따라 수열반응온도를 낮출 수 있었다. 또한 반응시간이 증가함에 따라 합성분말의 입도분포가 단분산 형태에서 이중형의 형태로 전이되고 입자들의 평균입경도 커짐을 알 수 있었다.

**Abstract**—In this study PZT powders were prepared by hydrothermal synthesis. The effects of reaction temperature, reaction time and concentration of mineralizer on crystallinity and the size distribution of particles were investigated. The PZT powders in uniform size of 1-5 µm with cubic shapes were obtained in the temperature range of 130-220 °C and the pressure range of 100-200 psi using KOH as a mineralizer which increases the solubility of feedstock. It was found that nucleation and development of crystal phases progressed rapidly as the reaction temperature increased, but the reaction temperature decreased as the concentration of mineralizer increased. It was also found that the shape of the size distribution of particles was changed from a monodispersion to a bimodal dispersion, and that the mean particle size increased as the reaction time increased.

**Key words:** Hydrothermal Synthesis, PZT Powders, Crystallinity, Size Distribution

### 1. 서 론

PZT 세라믹스는 전형적인 페로스카이트 구조를 갖는 산화물로서 유전율이 크며 압전성과 열에 대한 안정성이 우수하기 때문에 전자 제품에 널리 사용되고 있다[1, 2]. 원료분체를 성형한 후 소결공정을 거쳐 사용되는 PZT 세라믹스의 최종적인 물성은 소결조건에 대하여 크게 영향을 받을 뿐 아니라 소결에 사용되는 원료분말의 입자 크기, 형태 및 입도분포 등에 크게 의존하므로 원료분말의 제조에 관한 공정개발이 필수적으로 요구된다[3]. 산화물 세라믹스의 제조 방법 중의 하나인 수열합성법은 금속염, 산화물, 수화물 혹은 금속 분말을 용액상태나, 현탁액 상태에서 이들이 물질의 용해도, 온도, 압력 및 용매의 농도에 의존하는 특성을 이용하여 합성하거나 결정을 성장시키는 방법[4-6]으로 하소단계와 분쇄공정이 필요없어 공정이 단순하고 에너지 면으로 공정효율이 좋으며 분쇄시 불순물이 침투하는 문제가 해결됨으로서 생성분말의 순도가 매우 높다. 또한 입

자간의 응집이 일어나지 않아 성형과정에서 분산이 용이한 장점이 있으며 성형 및 소결특성이 우수하기 때문에 산화물 세라믹스의 미분말 제조방법으로 많이 이용되고 있다[7-11]. 한편 수열합성에 용액의 용해도를 증가시키기 위하여 광화제(mineralizer)를 첨가하기도 하는데 이의 존재여부에 따라 액상에서 핵생성 및 이의 성장속도가 크게 달라지며 수열합성온도가 변하고 원하는 합성물이 선택적으로 생성되기도 한다. 따라서 광화제의 선택은 수열합성법에 있어서 매우 중요하다[8, 12].

수열합성법을 이용한 PZT 분말제조는 몇몇 선행 연구자들에 의하여 진행되어 왔다. Beal[12]은 수열합성법을 이용한 PZT 결정분말을 제조함에 있어서 다양한 광화제들(Li, Na, 그리고 K)을 이용하여 광화제의 효과와 특성을 조사하였으며 Lee[13] 등은 수열합성법에 의해 제조된 분말은 상대적으로 낮은 온도에서도 소결이 가능하다고 보고하였다. Humin Cheng[14]은 PZT 결정분말의 합성메카니즘에 대해서 언급하였는데 수열용액 중에서 Zr<sup>4+</sup>와 Ti<sup>4+</sup>의 고른 분포로

인하여 계의 엔트로피가 증가하기 때문에 반응현탁액에서 바로 Pb (Zr, Ti)O<sub>3</sub>가 형성된다고 보고하였다.

본 연구에서는 Pb(CH<sub>3</sub>COO)<sub>2</sub>, Pb(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, Ti(OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>4</sub>, ZrOCl<sub>2</sub>, Zr (OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>4</sub> 등 5가지의 출발물질을 이용한 PZT 분말의 수열합성시 광 화제의 첨가량, 반응온도 그리고 반응시간 등의 제조조건이 변화할 때 PZT 분말의 결정성, 입도분포 및 입자크기가 어떻게 변하는가를 실험 · 고찰하였다.

## 2. 실험

### 2-1. 시약 및 반응기

수열반응을 위해 내부의 부식 방지용 테프론 라이너가 부착된 1 l 용량의 고압반응기(autoclave)가 사용되었으며, 반응시료로는 Pb(CH<sub>3</sub>-COO)<sub>2</sub> · 3H<sub>2</sub>O(Shinyo社), Pb(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(Junsei社), Ti(OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>4</sub>(Aldrich社), Zr(OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>)<sub>4</sub>(Aldrich社)와 ZrOCl<sub>2</sub> · 8H<sub>2</sub>O(Junsei社)이 출발물질로, KOH (Shinyo社)가 광화제로 각각 사용되었다.

### 2-2. PZT 분말 제조 실험

본 연구에서는 반응온도의 변화, 반응시간의 증감 및 광화제 첨가 등이 합성되는 PZT 분말의 결정성, 입도분포 및 입자크기에 미치는 영향을 알아보기 위하여 다음과 같은 수열조건에서 실험하였다. 수 열합성시 반응온도는 130 °C에서 200 °C의 범위에서, 반응시간은 10 분에서 10시간 사이로 변화시켜 그 영향을 조사하였으며, 선행연구 [15]에서 우수한 광화제로 판정된 KOH를 5 wt%에서 17 wt%까지 그 첨가량을 변화시켜 합성조건에 미치는 영향을 조사하였다.

출발물질이 서로 다른 네 가지 유형(I-IV)의 실험조합이 Table 1에 제시되어 있다. A열은 납계의 시약이며 B열은 티타늄계 그리고 C 열은 지르코늄계 시약으로 0.5 M의 B열 수용액과 0.5 M의 C열 수 용액을 먼저 혼합시킨 후, 이 혼합용액에 0.5 M의 A열 수용액을 넣어 반응현탁액을 만들어 고압반응기에 넣고 KOH를 첨가하여 수열 반응시켰다. 이때 B열과 C열에서 알콕사이드(alkoxide)계 시약의 용 매로는 에탄올이 사용되었다.

위의 각 반응으로부터 합성된 분말은 10% 아세트산 수용액과 에 탄올을 이용하여 세척한 다음 증류수로 충분히 반복 세척하여 여과 하였다. 여과된 합성분말은 건조시 입자간의 응집을 방지하기 위하 여 동결건조기를 이용하여 건조하였다.

### 2-3. 특성평가

합성된 PZT 분말의 결정상과 결정구조를 조사하기 위해 XRD(Mac Science Co., MXP3)와 FT-IR(Nicolet, Magna-IR spectrometer 550) 분석 을 각각 수행하였으며 SEM을 통해 입자의 결정형 및 응집상태를 관찰하였다. 또한 PSA(Particle Size Analyzer; Malvern, Master Siz-er E)를 이용하여 합성분말의 입자크기와 입도분포를 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

Table 1. Combinations of starting materials for the hydrothermal reactions

Type	Starting materials			Mineralizer
	A	B	C	
I	Pb(CH <sub>3</sub> COO) <sub>2</sub> · 3H <sub>2</sub> O	Ti(OC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	ZrOCl <sub>2</sub> · 8H <sub>2</sub> O	KOH
II	Pb(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Ti(OC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	ZrOCl <sub>2</sub> · 8H <sub>2</sub> O	KOH
III	Pb(CH <sub>3</sub> COO) <sub>2</sub> · 3H <sub>2</sub> O	Ti(OC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	Zr(OC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	KOH
IV	Pb(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Ti(OC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	Zr(OC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	KOH

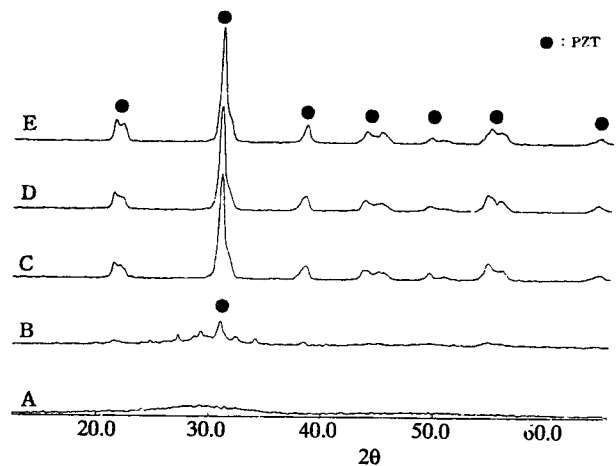


Fig. 1. XRD patterns of products formed at various reaction temperatures(A: room temp., B: 150 °C, C: 160 °C, D: 170 °C, E: 180 °C, using Type IV, reaction time: 2 hr, with 9 wt% KOH).

### 3-1. 온도에 대한 영향

Fig. 1은 반응온도의 변화에 따른 합성물의 XRD 분석결과로서, Type IV 조합의 출발물질에 KOH를 9 wt% 첨가하여 2시간 동안 수 열반응시켜 얻은 합성분말들의 분석결과이다. 실온에서 반응시킨 합성물의 분석결과 (A)에서는 완전한 무정형의 상을 볼 수 있으며, 150 °C에서 반응시켜 얻은 합성물의 결과인 (B)에서는 무정형의 상으 로부터 결정상이 미약하게 발달된 상태의 혼합상을 볼 수 있다. 그러 나 160 °C 이상의 수열반응에서 얻은 합성물들의 분석결과인 (C), (D) 및 (E)에서는 PZT 주요 결정면을 나타내는 2θ=22°(001면), 2θ=31° (110면), 2θ=45°(200면) 그리고 2θ=55°(211면) 위치에서 회절강도가 강한 결정상을 볼 수 있다. 이는 수열합성된 분말이 입방체 모양의 PZT 결정임을 보여주는 것으로서 150-160 °C 사이에서 상전이가 급 격히 일어났음을 알 수 있다. 또한 XRD 분석결과를 통해서 볼 때, 반 응온도에 따라 PbO의 결정이 존재하는 무정형에서 PbTiO<sub>3</sub>의 중간 결 정상을 나타내지 않고 바로 PZT 결정으로 진행하였음을 알 수 있다.

Fig. 2는 Fig. 1의 분석결과로부터 2θ=31°인 110면의 회절강도변 화를 반응온도에 따라 나타낸 선도로써 반응온도가 결정면 발달에

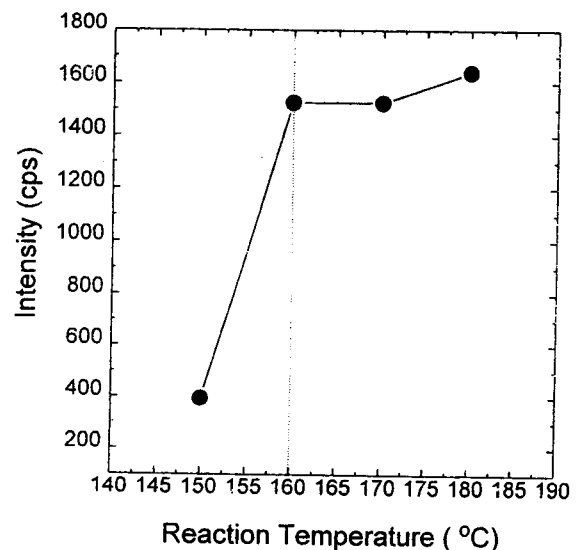


Fig. 2. Intensity change of (110) phase formed with reaction temper- ature(using Type IV, reaction time: 2 hr, with 9 wt% KOH).

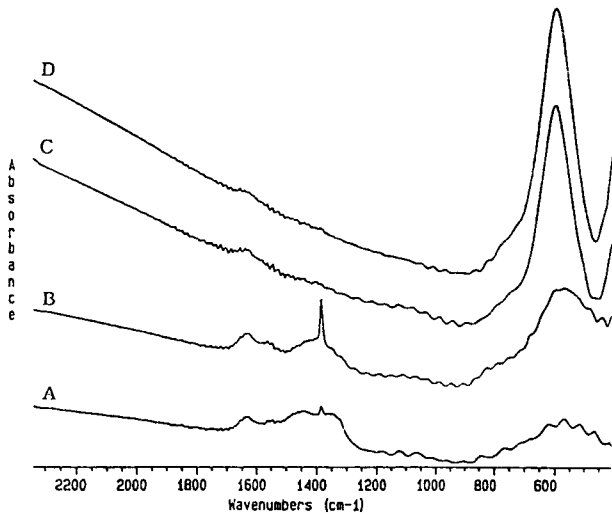


Fig. 3. FT-IR spectra of products formed at various reaction temperatures(A: room temp., B: 150 °C, C: 160 °C, D: 180 °C using Type IV, reaction time: 2 hr, with 9 wt% KOH).

미치는 영향을 조사한 결과이다. 결과를 통해 150-160 °C에서 급격하게 PZT 결정면의 회절강도가 커졌으며 160 °C 이상에서는 회절강도의 변화가 거의 없음을 알 수 있다. 이와 같은 결과로부터 160 °C 이상에서는 반응온도가 결정면 발달에 별다른 영향을 미치지 않는다는 사실을 알 수 있다.

Fig. 3은 반응온도변화에 따른 합성분말의 표면구조를 확인해 보기 위한 FT-IR 분석결과이다. 실온과 150 °C에서 각각 수열반응시켜 합성한 분말은 (A)와 (B)에서 볼 수 있듯이 1650-1200 cm<sup>-1</sup>에서 알킬기[16]에 의한 것으로 추정되는 흡수스펙트럼을 확인할 수 있다. 그러나 160 °C와 180 °C에서 제조한 합성분말은 (C)와 (D)에서 볼 수 있듯이 알킬기의 흡수스펙트럼이 사라지고 없음을 알 수 있다. 이는 결정화 과정을 통해 PZT 결정분말이 합성되는 과정에서 점차적으로 알킬기가 사라지면서 안정된 PZT 결정구조를 갖는 합성분말이 형성된다는 사실을 보여주는 결과이다. 따라서 이같은 표면구조 분석결과는 완전한 PZT 결정분말을 합성하기 위해서는 160 °C의 반응온도가 요구된다는 사실을 보여주는 것으로서 Fig. 1의 XRD 분석결과와 잘 일치하고 있음을 알 수 있다.

Fig. 4는 Type IV 조합의 출발물질에 KOH를 9 wt% 첨가하여 150 °C와 180 °C에서 각각 2시간 동안 반응시킨 합성분말의 SEM 사진으로 150 °C에서 합성된 분말의 SEM 사진인 (A)로부터 결정을 형성하지 못한 무정형 입자들이 서로 응집된 형태를 볼 수 있으며 180 °C에서 합성된 분말의 SEM 사진인 (B)로부터 고른 입도분포를 갖는 입방체 모양의 PZT 결정분말을 볼 수 있다.

Fig. 5는 150 °C와 180 °C의 반응온도에서 각각 반응시간 변화에 따른 (110면)의 회절강도를 조사한 결과이다. 결과로부터 반응시간이 증가함에 따라 회절강도가 커졌으며 180 °C에서 제조한 분말이 150 °C에서 제조한 분말에 비해 회절강도의 변화가 동일한 반응시간에 대하여 상대적으로 크게 나타난 사실을 알 수 있다. 이와 같은 결과로부터 핵생성 및 PZT 결정면의 발달이 반응온도가 증가함에 따라 빠르게 진행됨을 알 수 있다. 그 이유는 용액 중에서의 분자들간의 반응이 일어날 때 반응온도가 높을수록 수열용액에 존재하는 분자나 이온들의 이동도(mobility)가 증가하며 확산속도가 빨라짐으로 인해 결정성장속도가 증가하고 아울러 결정면이 잘 발달되기 때문이다.

### 3-2. 광화제에 대한 영향

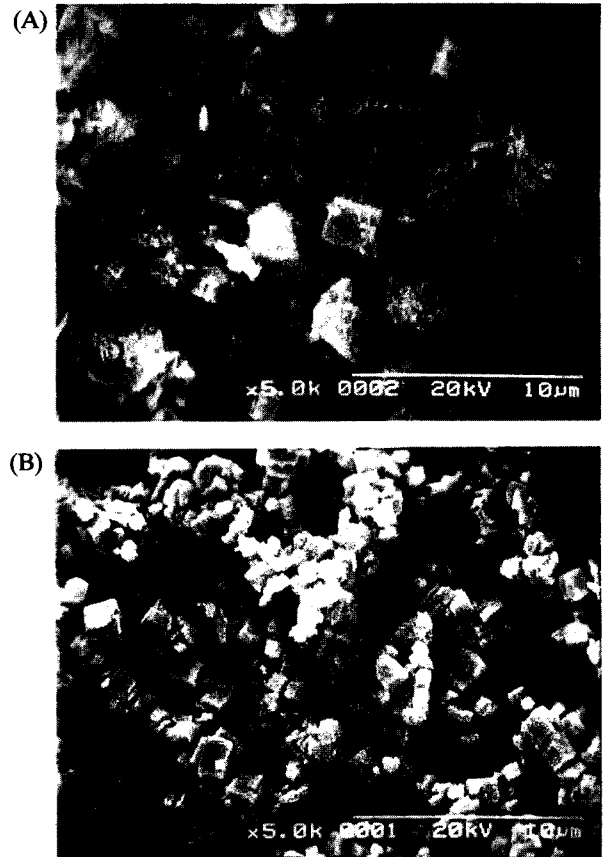


Fig. 4. SEM micrographs of PZT powders formed at different reaction temperature(A: 150 °C, B: 180 °C, using Type IV, reaction time: 2 hr, with 9 wt% KOH).

Fig. 6은 Type III 조합의 출발물질에 KOH를 광화제로 9 wt%와 12 wt% 씩 각각 첨가하여 150 °C에서 2시간 동안 수열반응시켜 얻은 합성분말의 입도분포를 보여주는 적산곡선이다. 본 저자들의 선행연구[9]에서 이미 보고된 바 있는 이들 각각에 대한 XRD 분석결

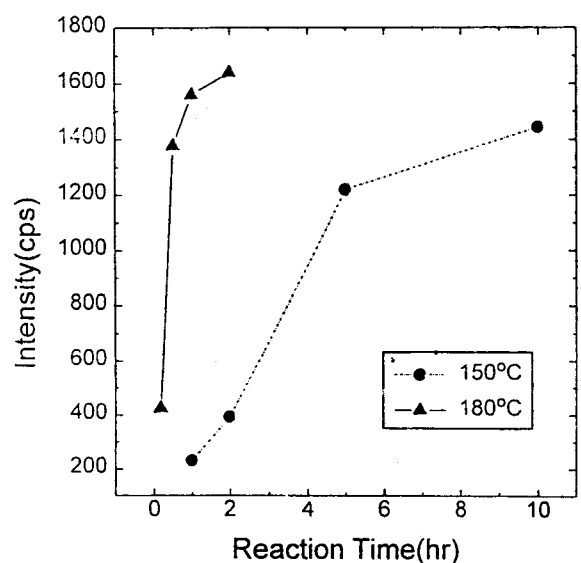


Fig. 5. Intensity changes of (110) phase formed with reaction time at different reaction temperature(using Type IV, concentration of the mineralizer: 9 wt% KOH).

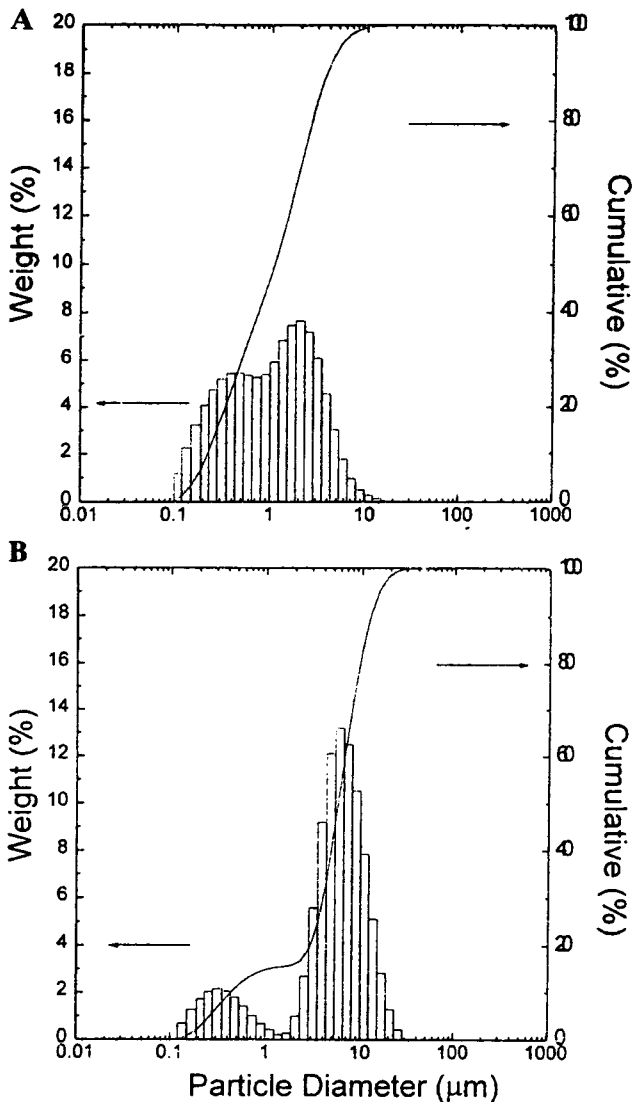


Fig. 6. Particle size distribution of PZT powders formed with various KOH concentration(A: 9 wt% KOH, B: 12 wt% KOH, using Type IV, reaction time: 2 hr, at 150 °C).

과에 기초하여 Fig. 6의 입도분석결과를 살펴보면 다음과 같다. (A)는 XRD 분석을 통해서 볼 때 완전히 결정상을 갖지 못하고 PbO가 일부 포함되어 있는 상태의 합성분말로서 무정형에서 결정형으로 상전이가 일어나고 있는 전이상태의 분말을 조사한 결과이다. 그림 (A)에서 볼 수 있듯이 0.1-10 μm의 크기에 해당하는 입자가 넓게 분포되어 있는데, 이는 결정으로 완전하게 발달하지 못한 입자들의 영향때문으로 보여진다. 반면에 (B)는 합성된 PZT 결정분말을 조사한 결과로서 광화제 첨가량이 증가함에 따라 결정성장 속도가 증가하여 입경이 1-10 μm에 해당하는 입자군의 양이 상대적으로 증가했음을 보여주고 있다.

한편, 이중형의 입도분포 특성은 선행연구[17]에서도 조사된 바와 같이 핵생성 속도보다 결정성장 속도가 상대적으로 빠를 경우에 생기는 현상으로서 광화제 첨가량을 증가시키면 용액내에서 기질의 용해도가 증가하여 핵생성 속도와 이의 성장을 위한 물질전달 속도가 모두 증가하지만 상대적으로 핵생성 속도가 빠르기 때문에 이중형의 입도분포 특성을 보이는 것으로 판단된다.

Fig. 7은 반응시간변화에 따른 (110면)의 회절강도변화로서 KOH

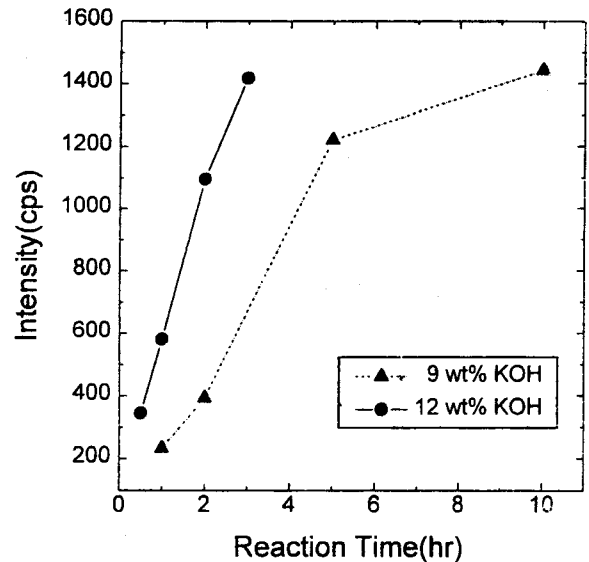


Fig. 7. Intensity change of (110) phase formed with reaction time at different KOH concentration(using Type IV, at 150 °C).

를 각각 9 wt%와 12 wt% 첨가하여 수열합성한 분말들에 대한 결과이다. 그림에서 볼 수 있듯이 반응시간이 길어짐에 따라 회절강도가 커짐을 알 수 있었다. 이는 광화제 첨가량이 증가함에 따라 상대 과포화도가 증가하여 임계핵의 반경이 작아지므로 핵생성이 용이하며, 반응시간이 길어짐에 따라 물질전달량이 증가하여 결정면이 잘 발달되기 때문으로 판단된다[18].

Fig. 8은 PZT를 합성하기 위해 요구되는 광화제의 첨가량과 수열 반응온도의 상관관계를 도식한 그림으로 광화제 첨가량과 반응온도를 각각 변화시키면서 2시간 동안 반응시킨 합성물의 상태를 나타내는 결과이다. 선을 중심으로 상부는 안정된 상을 갖는 PZT 결정이 생성된 영역이며 하부는 무정형이나 불안정한 상을 갖는 결정이 생성된 영역을 나타낸다. 그림으로부터 광화제 첨가량이 증가할수록 더 낮은 수열온도에서도 안정된 분말이 합성됨을 알 수 있다. 이는

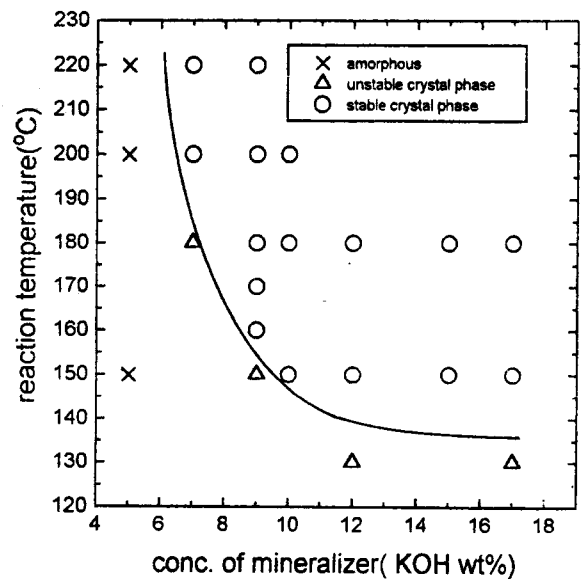


Fig. 8. Relation of reaction temperature vs conc. of a mineralizer for the formation of PZT powders(using Type I, reaction time: 2 hr).

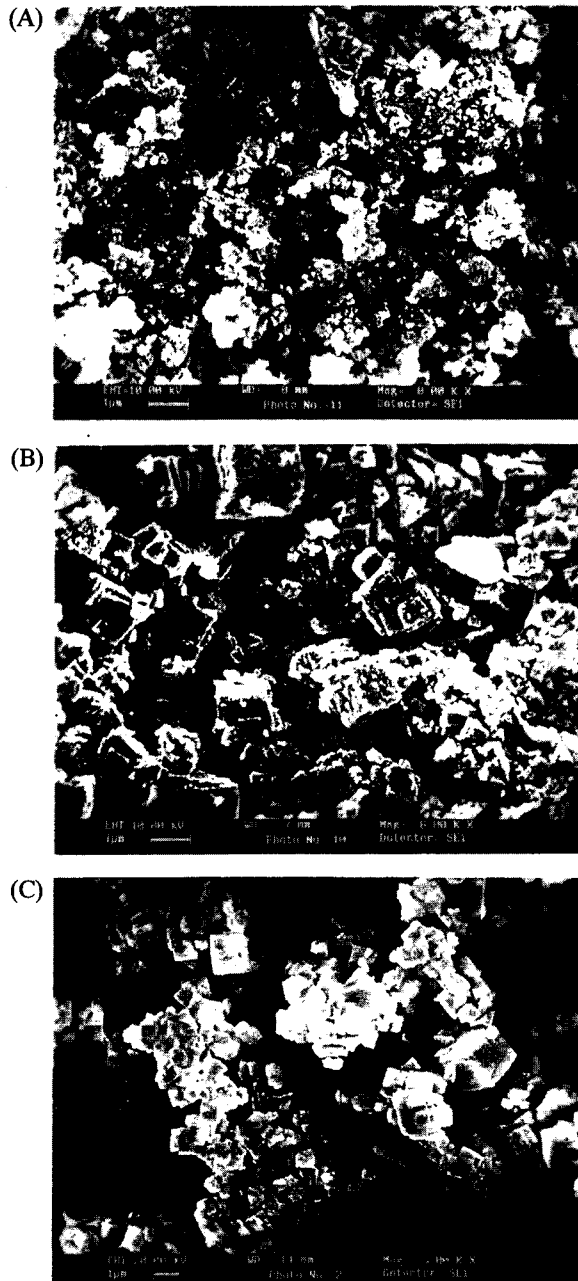


Fig. 9. SEM micrographs of products formed with various reaction times(A: 1 hr, B: 5 hr, C: 10 hr, using Type IV, with KOH 9 wt%, at 150 °C).

광화제가 첨가됨에 따라 용액내에서 기질의 용해도가 증가하여 핵 생성 및 성장 속도가 증가되기 때문이다.

### 3.3. 반응시간에 대한 영향

Fig. 9는 Type IV 조합의 출발물질에 KOH를 9wt% 첨가하여 150 °C에서 제조한 PZT 합성물의 SEM 사진이다. (A)는 1시간 동안 수열반응시켜 얻은 생성물의 사진으로서 이로부터 무정형들이 응집되어 있는 형태를 볼 수 있으며, (B)는 5시간 동안 수열반응시켜 얻은 합성물의 사진으로서 이로부터 결정면이 완전하게 발달하지 못하여 결정 표면에 무정형의 입자가 달라붙어 있는 결정상태를 볼 수 있다. 또한 (C)는 10시간 동안 수열반응시켜 얻은 합성물의 사진으로서 이로부터 1-3  $\mu\text{m}$  크기를 갖는 입방체 모양의 PZT 결정분말을 볼

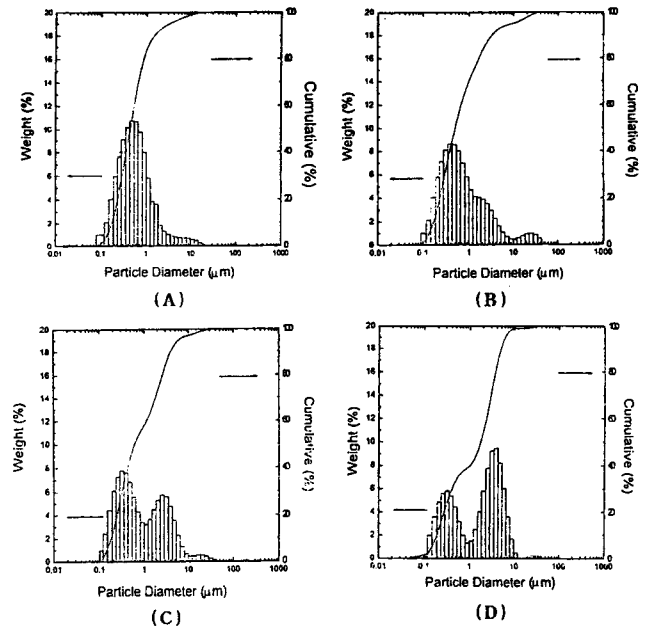


Fig. 10. Particle size distribution of PZT powders formed with various reaction times(A: 1 hr, B: 2 hr, C: 5 hr, D: 10 hr, using Type IV, with 9 wt% KOH, at 150 °C).

수 있다. 즉 안정된 PZT 결정상을 얻기 위해서는 적절한 반응시간이 요구되며 이는 선행연구[9]의 결과와 일치하는 내용이다.

Fig. 10은 Type IV 조합의 출발물질에 KOH를 9wt%첨가하여 150 °C에서 1, 2, 5 및 10시간 동안 각각 수열반응시켰을 때 반응시간에 따른 수열합성물의 입도분포 변화를 나타낸 적산곡선들이다. (A)와 (B)는 각각 1시간과 2시간 동안 수열반응시켜 얻은 합성분말의 입도분포로서 선행된 연구[9]의 결과로부터 PZT의 결정상을 전혀 얻지 못한 무정형으로 조사된 합성분말의 입자군을 나타내고 있다. (C)와 (D)는 각각 5시간과 10시간 동안 반응시켜 얻은 합성물의 입도분포로서 안정된 PZT 결정상을 갖는 결정분말의 입자군을 나타내고 있다. 1시간 반응시켜 얻은 합성물의 입도분포 (A)는 입자들이 0.1-1  $\mu\text{m}$ 의 크기에 집중되어 있음을 보이고 있는데 이와 같은 결과는 핵 생성 및 결정성장이 전혀 이루어지지 못한 단분산 입자계의 특성을 나타낸다. 2시간 반응시켜 얻은 합성물의 입도분포 (B)는 이중형(bimodal)의 형태가 나타나기 시작하면서 서서히 입경이 큰 쪽으로 입자군이 이동하는 현상을 보이고 있으며 5시간 반응시켜 얻은 합성물의 입도분포 (C)는 PZT 결정들이 1-10  $\mu\text{m}$ 의 입자군으로 성장한 이중형의 입도분포를 보이고 있다. 반응시간이 길어지면 이와 같은 현상이 더욱 심화되어 커다란 입자들의 양이 증가하게 되는데 이는 그림 (D)로부터 확인할 수 있다. 즉 반응시간이 길어짐에 따라 지속적으로 이루어진 결정성장에 의해 크게 성장한 입자군의 분포량이 상대적으로 많아지며 핵생성 반응 역시 지속적으로 일어나지만 핵생성 속도보다 결정성장 속도가 상대적으로 클 경우에 이중형의 입도분포를 보이는 것으로 추정된다.

Fig. 11은 반응시간에 따른 평균입자크기의 변화를 나타낸 그래프로서 Type IV 조합의 출발물질에 KOH를 9wt% 첨가하여 각각 150 °C와 160 °C에서 조사한 결과이다. 160 °C에서 30분 동안 반응시킨 경우 입자들의 평균입경이 0.5  $\mu\text{m}$  였으나 5시간 동안 반응시킨 경우에는 3.4  $\mu\text{m}$ 로 커짐으로서 반응시간이 증가함에 따라 입자들이 성장했음을 알 수 있다. 그러나 150 °C에서는 5시간 동안의 반응을 통해 평균입경이 0.5  $\mu\text{m}$ 에서 0.7  $\mu\text{m}$ 로 매우 미약하게 커졌음을 알 수 있다. 결과로부터 수열반응온도가 증가하고 반응시간이 증가함에 따

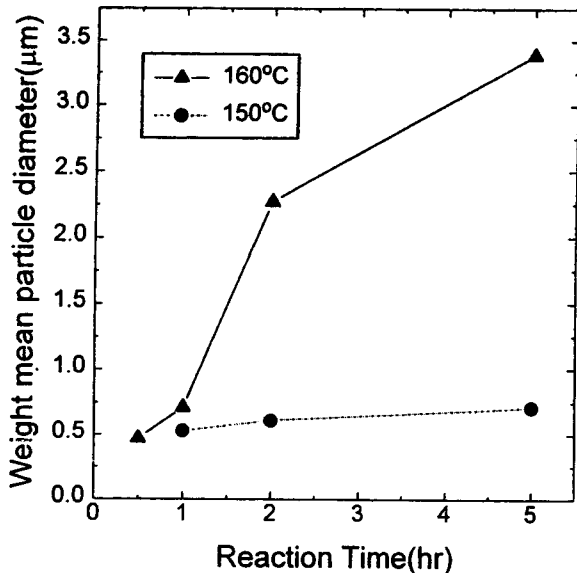


Fig. 11. Effect of reaction time on mean particle diameter of PZT powders at different temperature (using Type IV, concentration of the mineralizer: 9 wt% KOH).

라 입자의 중량평균입경이 증가하였음을 알 수 있는데, 이는 온도가 증가함에 따라 물질확산속도와 결정화 반응속도가 증가하며 반응시간이 길어짐에 따라 지속적인 물질전달에 의해 결정성장이 이루어지기 때문으로 생각된다.

#### 4. 결 론

수열합성법을 이용하여 200 °C 이하의 반응온도에서 광화제 KOH를 6.5-10 wt% 첨가하여 이중형의 입도 분포를 갖는 입방체 모양의 PZT 결정분말을 제조하였으며 아래와 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) KOH를 9 wt% 첨가하여 2시간 동안 수열반응시켰을 때 150-160 °C에서 급격하게 핵생성이 일어났으며 160 °C 이상의 온도에서 안정된 PZT 결정분말을 합성할 수 있었다. 또한 XRD 결과를 통해 PbO의 결정이 존재하는 무정형에서 PbTiO<sub>3</sub>의 중간 결정상을 나타내지 않고 바로 PZT 결정으로 진행하였음을 알 수 있었다.

(2) 반응온도가 높을수록 용액 중의 분자나 이온들이 이동도(mobility)가 증가하고, 확산속도가 빨라져서 핵생성 및 결정성장속도가 증가하여 PZT의 결정면이 완벽하게 발달됨을 알 수 있었다.

(3) 광화제 첨가량이 증가할수록 더 낮은 수열온도에서도 안정된 분말이 합성됨을 알 수 있는데 이는 광화제 첨가량이 증가함에 따라 상대과포화도가 증가하게 되고 결국 임계핵의 반경이 작아지므로 낮은 온도에서도 쉽게 핵생성이 일어나기 때문이다.

(4) 반응시간이 길어짐에 따라 지속적으로 이루어진 결정성장에 의해 크게 성장한 입자군의 분포량이 상대적으로 많아지며 핵생성반응

역시 지속적으로 일어나지만 핵생성 속도보다 결정성장 속도가 상대적으로 클 경우에 이중형의 입도분포를 보이는 것으로 추정된다.

(5) 수열반응온도가 증가하고 반응시간이 길어짐에 따라 입자의 중량평균입경이 증가하였는데 이는 온도가 증가함에 따라 물질확산속도와 결정화 반응속도가 증가하며 반응시간이 길어짐에 따라 지속적인 물질전달에 의해 결정성장이 이루어지기 때문으로 생각된다.

#### 감 사

본 연구는 교육부의 학술연구조성비(신소재분야) 지원에 의하여 수행되고 있는 '최적수열조건을 이용한 PSZT 분말제조' 연구의 일부이며 지원에 감사드립니다.

#### 참고문헌

- Haertling, G. H.: "Ceramic Materials for Electronic", ed. Relva C. Buchanan, Marcel Dekker Inc., NY., 2(1991).
- Kanai, H., Furukawa, O., Abe, H. and Yamashita, Y.: *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 2620(1994).
- Binner, J. G. P.: "Advanced Ceramic Processing and Technology", Noyes Publications, Park Ridge, New Jersey, 1(1990).
- William, J. D.: *Ceramic Bulletin*, **67**, 1673(1988).
- Chernov, A. A.: "Modern Crystallography III: Crystal Growth", Springer-Verlag, Berlin, 353(1984).
- Marschall, D. J. and Laudise, R. A.: *J. Crystall Growth*, **1**, 88 (1967).
- Xu, Y.: "Ferroelectric Materials and Their Applications", Elsevier Science Publishing Company, Inc., NY., 115(1991).
- 이종근: "무기재료공학", 반도출판사, 서울(1990).
- 정성택, 이기정, 서경원: 한국결정성장학회지, **6**, 254(1996).
- 반종성, 이기정, 서경원, 목영일, 이철경: 한국결정성장학회지, **6**, 129(1998).
- 서경원, 이기정, 반종성, 정성택: "수열합성법에 의한 단결정 산화물제조의 기초연구", 한국자원연구소, 대전(1996).
- Beal, K. C.: "Ceramic Powder Science, Advances in Ceramics", The American Ceramic Society, Inc., N.Y., 21(1987).
- Lee, K. H., Asaga, K., Ichihara, T. and Daimon, M.: *Yogyo Kyo-kaishi*, **95**, 738(1987).
- Cheng, H., Ma, J., Zu, B. and Cui, Y.: *J. Am. Ceram. Soc.*, **76**, 625(1993).
- Lee, K. J., Seo, K. W., Yu, H. S. and Mok, Y. I.: *Korean J. Chem. Eng.*, **13**(5), 489(1996).
- 김복희, 최의석, 최석홍, 이태석: *Journal of the Korean Ceramic Society*, **28**, 67(1991).
- 정성택, 이기정, 서경원: 한국공업화학회지, **8**, 292(1997).
- Heijden A. E. D. M. and Rosmalen, G. M.: "Bulk Crystal Growth-Basic Techniques", ed. Hurle, D. T. J., N. H., N.Y.(1994).