

## Sol-Gel process를 이용한 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> 복합 미립자의 합성

구 상 만 · 이 동 현 · 류 창 석\* · 이 용 은\*\*

한양대학교 공업화학과

\*코리아나 화장품 연구소

\*\*국립기술품질원 화학부 무기화학과

(1997년 1월 8일 접수, 1997년 3월 11일 채택)

### Preparation of SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> Composite Fine Powder by Sol-Gel Process

S. M. Koo, D. H. Lee, C. S. Ryu\*, and Y. E. Lee\*\*

Dept. of Industrial Chemistry, Hanyang University, Seoul, 133-791, Korea

\*Biochemistry team, R&D Center, Coreana Cosmetics, Cheonan 333-830, Korea

\*\*Inorganic Division, National Institute of Technology and Quality, Kwachon 427-010, Korea

(Received January 8, 1997, Accepted March 11, 1997)

**요 약 :** 응집이 없는 단분산의 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> 복합 미립자를 얻기 위하여 TiO<sub>2</sub> seed가 분산되어 있는 에탄올 수용액과 TEOS (Tetraethyl Orthosilicate)를 에탄올에 녹인 용액을 혼합하여 TiO<sub>2</sub> 주위에서 TEOS가 가수분해 및 축합 반응이 일어나도록 유도하여 복합 미분말을 제조하였다. 촉매로 암모니아를 사용하였고, 반응온도는 실온이었다. 반응변수는 TEOS의 농도, 암모니아의 농도, TiO<sub>2</sub> seed의 크기 및 양이었다. 응집이 없는 복합 미립자를 얻기 위한 최적조건은 [TEOS]=0.3M, [NH<sub>3</sub>OH]=0.7M, TiO<sub>2</sub> seed의 크기가 200~300 nm이었고, 이때 0.8~0.9 $\mu$ m의 입자크기를 갖는 복합입자를 얻을 수 있었다.

**Abstract :** Monodisperse, spherical SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> composite fine powders were prepared by modified Sol-Gel process which TiO<sub>2</sub> fine powders was used as a seed particles for condensation of TEOS (Tetraethyl Orthosilicate). The reaction was carried out under N<sub>2</sub> atmosphere at ambient temperature using NH<sub>3</sub> as a catalyst. Ethanol was used as a solvent. Drying process was carried out with vacuum trap which cooled by liquid N<sub>2</sub>. The reaction variables were the concentration of TEOS, the concentration of ammonia, the size of TiO<sub>2</sub> seed and molar ratio of SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>. The optimum condition for the preparation of SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> composite fine powders without agglomeration was [TEOS]=0.3M, [NH<sub>3</sub>]=0.7M, size of TiO<sub>2</sub> seed = 200~300nm.

### 1. 서 론

고도로 정선된 원료를 이용하여 화학 조성을 정밀 제어하여 가공함으로써, 우수한 구조와 조직을 갖도록 제조되는 "FINE CERAMICS"는 종래에 볼 수 없었던 우수한 물성 즉, 물리적, 열적, 역학적, 생화학적, 광학적인 특성이 뛰어나 점차로 용도가 다양해지고 있다[1-3, 10]. 초기 입자의 단분산성 및 순도가 최종 입자의 성질에 큰 영향을 미치므로[1-3, 5], 최근의 연구는 입자 크기나

형태, 입도 분포 등과 같은 물리적 특성을 화학적인 방법을 통해 제어하는 방향으로 나아가고 있다. 알콕사이드 화합물의 가수분해법은 액상법의 일종으로, 순도가 높은 알콕사이드를 원료로 사용할 수 있을 뿐만 아니라 상온에서 가수분해되어 산화물, 수산화물, 수화 산화물을 형성하여 가수분해 조건을 쉽게 조절할 수 있고 OH<sup>-</sup>이온 이외의 불순물이 혼입될 우려가 없어서 고순도의 생성물을 얻을 수 있다는 장점을 갖고 있다[1, 3]. 이러한 방법으로 여러 종류의 세라믹 전구체 합성에 관한

연구가 진행되고 있다[4, 9, 13, 22-24].

1968년 Stöber 등은[4] 암모니아를 촉매로 한 silicon alkoxide의 aqueous alcohol 용액으로부터 단분산된 SiO<sub>2</sub> 입자를 얻는 방법을 연구하였다. 이 반응은 alkoxide의 hydrolysis와 condensation (alcohol condensation과 water condensation)으로 나뉘는 데 반응 조건에 따라서 3차원 gel network 구조를 갖거나 1차원의 linear 구조를 갖는다. 이것은 주로 용액의 pH에 따른 반응 메카니즘의 차이 때문인 것으로 밝혀져 있다[1-3, 16-17]. 또한 최종입자의 크기에 영향을 미치는 인자로서는 alkoxide의 농도(alkoxide/H<sub>2</sub>O ratio), 암모니아의 농도, alkoxide에 붙어 있는 hydrocarbon의 길이, 알콜의 종류 등이 있다. 또한 Tan 등은[6] 온도의 영향에 대하여 연구하여 온도가 높을수록 입자크기가 커지고, 응집이 많이 된다는 것을 밝혔다. Bogush 등은[12] NaCl 등의 전해질이 미치는 영향에 대해 연구하였다. 또 Bogush 등은[11] 입자를 성장시키는 방법으로 seeded growth technique을 연구하였는데, 이 방법은 seed suspension을 기존의 Stöber process로 성장시켜 침전시키는 방법으로써 1 $\mu$ m를 넘지 않는 입자의 제조에 대하여 보고하고 있다. 이러한 silicon alkoxide를 이용한 실리카 미립자 제조연구가 활발한 것은 1 $\mu$ m 이하의 단분산 입자가 다른 세라믹의 유도 물질로써의 잠재적 능력이 뛰어나기 때문이다[3, 6]. 또한 TiO<sub>2</sub>는 빛의 산란 능력이 커서 백색 안료로서, 또 모든 안료의 조색제로써 페인트 산업에서 없어서는 안될 중요한 원료이며, 최근 그 반도체적인 특성이 알려지면서 고기능성 안료로서의 기능이 더욱 확대됨과 아울러 태양전지의 전극 재료 등에 이르기까지 새로운 용도로 개발되고 있다[1-3, 5]. TiO<sub>2</sub>에 SiO<sub>2</sub>를 복합화하면 분산성이 향상되고, 광촉매능을 억제하여 광안정성이 부여되는 특성으로 그 기능성이 높아지므로, 고굴절 재료 및 화장품, 도료, 전도성 분말 등으로 사용되고 있다.

본 연구에서는 sol-gel법을 이용하여 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> 복합 미립자를 제조하는 방법으로서, TiO<sub>2</sub> seed에 Tetraethyl Orthosilicate(TEOS)를 반응시켜 다층 구조를 갖는 복합 산화물 미분말을 합성하는 것을 목표로 하였다[9, 18-20].

## 2. 실험

### 2.1. 실험 시약

본 실험에 사용된 시약은 다음과 같다.

TEOS(Tetraethyl Orthosilicate) : Aldrich 98% ammonia water : Junsei 28%

ethanol : 동양화학공업의 98% 에탄올을 증류하여 사용  
water : 증류수

Titania seed powder : AEROSIL의 p-25(21nm), Nihon Kolmar의 MT-500B(30nm), T-28(200nm), WCD의 3328(300nm)를 사용하였다.

### 2.2. 실험 방법

#### 2.2.1. 실리카-티타니아 복합용액 제조

먼저 TiO<sub>2</sub> seed를 평량하여 B 플라스크에 넣고, 암모니아수와 증류수 그리고 에탄올을 넣은 후 교반한다. 교반은 magnetic bar를 이용하였다. B 플라스크를 교반하는 동안 A 플라스크에는 에탄올과 TEOS(tetraethyl orthosilicate)를 각각 넣고 약 5분간 교반한다. 이 때 A 플라스크는 질소 분위기를 유지한다. B 플라스크를 감압한 상태에서 A 플라스크에 있는 TEOS와 에탄올의 혼합물을 cannula를 통해 B 플라스크로 옮긴다. 옮겨진 B 플라스크에 계속 질소를 불어넣으면서 교반한다. 반응온도는 실온(약 20 $^{\circ}$ C)이었고, 반응시간은 약 1시간이었다.

#### 2.2.2. 분말제조

위에서 얻은 용액으로부터 분말을 얻기 위해 용매를 건조시켜 분말을 제조하였다. 이 때 liquid N<sub>2</sub> trap을 이용하여 감압하에 건조시켰으며, 건조시간은 약 1-2 시간이었다.

### 2.3. 분석

#### 2.3.1. SEM 및 EDS

입자의 크기 및 형태와 응집상태를 분석하기 위해 FE-SEM(Field Emission -Scanning Electronic Microscope, Hitachi S-4200)을 이용하였다. 또한 EDS (X-ray Energy-Dispersive Analysis)로 입자의 표면 성분을 분석을 위해 각 시편 표면에 EDS (Philips XL-30)로 표면에 두점씩 잡아서 Si와 Ti 무게비를 얻은 후 평균을 내었다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. TEOS 농도 변화실험

TEOS (Tetraethyl orthosilicate)의 농도 변화에 따른 입자의 크기 및 형태를 알아보기 위해 TEOS의 반응시 초기농도를 0.3M, 0.6M, 0.9M, 1.2M로 변화시켜 실험하였다. 나머지 변수들 및 TiO<sub>2</sub> seed에 관한 양은 Table 1에 나타내었으며, TiO<sub>2</sub> seed로 p-25(21nm)를 사용하였다. TEOS의 농도가 작은 경우, 즉 0.3M와 0.6M일 때는 입자의 응집이 일어나지 않은 깨끗한 구형 입자가 얻어졌

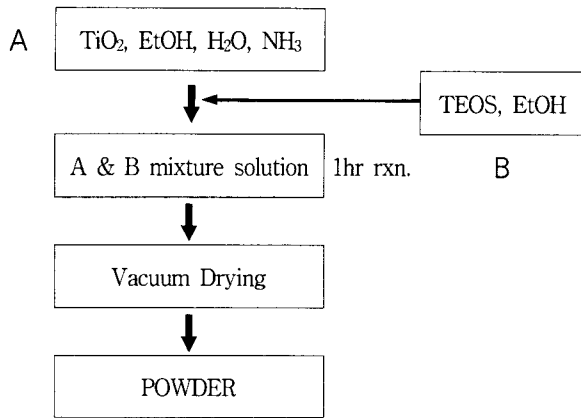


Fig. 1. Procedure for the preparation of composite powders.

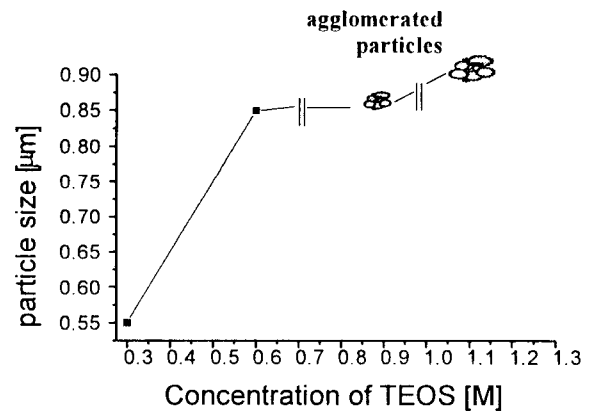


Fig. 2. Particle size and atomic compositions in different concentration of TEOS.

Table 1. Concentrations of Reactants ([H<sub>2</sub>O]=6.0M)

Variables	Concentration(M)	Constant
[TEOS](M)	0.3, 0.6, 0.9, 1.2	[NH <sub>3</sub> ] = 0.7M SiO <sub>2</sub> /TiO <sub>2</sub> = 100 TiO <sub>2</sub> = 20nm
[NH <sub>3</sub> ](M)	0.2, 0.4, 0.6	[TEOS] = 0.3M SiO <sub>2</sub> /TiO <sub>2</sub> = 100 TiO <sub>2</sub> = 20nm

으나 TEOS의 농도가 큰 경우 즉, 0.9M, 1.2M의 경우에는 입자들이 응집되는 현상을 볼 수 있었다. Fig. 2는 TEOS의 농도에 변화에 따른 입자의 크기를 나타내고 있으며, 대체로 TEOS의 농도가 커질수록 입자의 크기는 커지는 경향을 볼 수 있다(0.3M일 때 크기 0.55 μm, 0.6M일 때 0.9μm). TEOS의 농도가 최종입자의 크기에 미치는 영향에 대해서는 여러 실험이 진행되었는데 그 결과가 연구에 따라 차이를 보인다. Stöber[4]의 실험에서는 TEOS의 농도가 최종입자의 크기에 별로 영향을 미치지 않는 것으로 보고되었고, Bogush[11]의 실험과 R.Lindberg[10]의 실험에서는 TEOS의 농도 증가에 따라 최종입자의 크기가 커진다고 보고되고 있으며, Van Helden[25]의 실험에서는 TEOS의 농도 증가에 따라 최종입자의 크기가 작아진다고 보고되고[10] 있는데, 본 실험의 결과는 Bogush의 실험결과와 그 경향이 일치하였다. 이것은 TEOS의 농도가 작아지면 그만큼 초기에 가수분해되는 분자가 작아서 TiO<sub>2</sub> seed를 중심으로 크게 성장하고, TEOS의 농도가 큰 경우에는 TiO<sub>2</sub> seed를 중심으로 성장하는 것 이외에 TEOS 끼리 SiO<sub>2</sub> 핵을 형성하여, 입자들끼리 서로 뭉쳐서 불규칙한 형태로 성장하

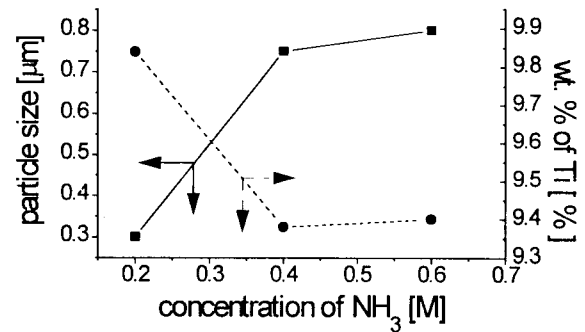
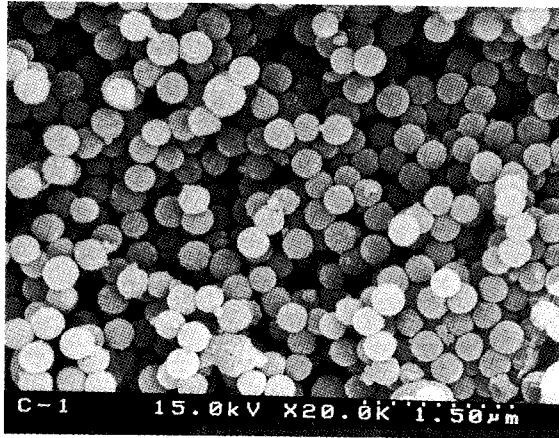


Fig. 3. Particle size and atomic compositions in different concentration of NH<sub>3</sub>.

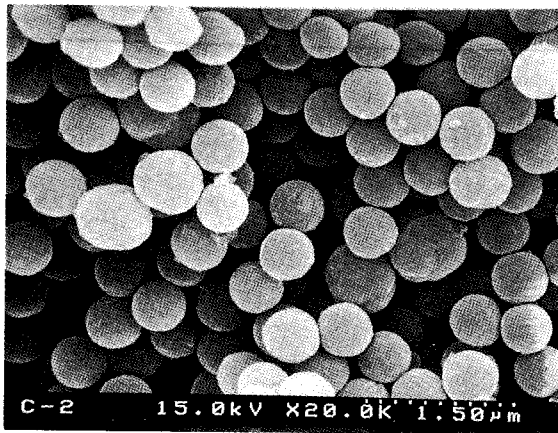
고 있는 것으로 예상된다. 그러므로 단분산된 입자를 얻기 위해서는 TEOS의 농도를 0.6M이하로 유지해야 한다고 볼 수 있다. 이 실험에서 TEOS의 농도가 가장 작았을 때 입자가 균일한 크기를 가지는 것을 볼 수 있으며, 이에 따라 단분산의 복합 입자를 얻기 위한 TEOS 농도의 최적조건은 0.3M으로 고정하였다.

### 3.2. 암모니아 농도 변화 실험

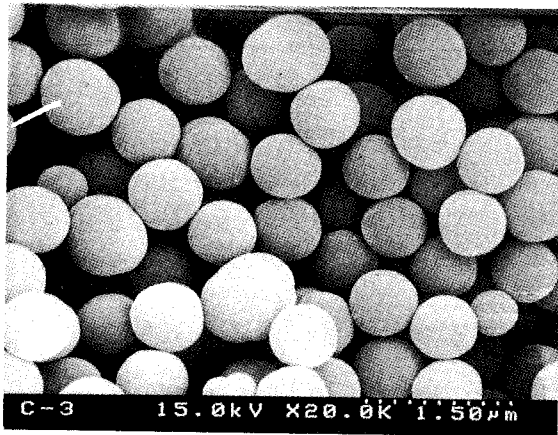
Stöber 등은 TEOS를 출발물질로 하여 SiO<sub>2</sub>를 제조하는 실험에서[4] 암모니아를 촉매로 사용하였는데, 이 실험에서 암모니아를 사용하지 않은 경우에는 SiO<sub>2</sub> 입자가 응집되어 있고 그 형태도 불규칙적인데 반하여 암모니아를 사용한 경우 단분산의 구형입자를 형성하는 것을 비교함으로써 암모니아가 구형입자를 형성시키는 morphological catalyst로써의 작용성이 있음을 발견하였다. 또한 암모니아의 농도가 높아지면서 입자의 크기가 커지는 경향을 보였다[4, 10-11]. 따라서 본 실험에서는 TiO<sub>2</sub>를 seed로 사용하는 복합입자 제조에 암모니아를



(a)



(b)



(c)

Fig. 4. Scanning electron microscopy of  $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$  composite powders in different concentration of  $\text{NH}_3$ .  
 $[\text{NH}_3]$  = (a) 0.2M (b) 0.4M (c) 0.6M

촉매로 사용함으로써 암모니아가 이 경우에 있어서도 구형입자를 형성시키는 morphological catalyst로 작용하

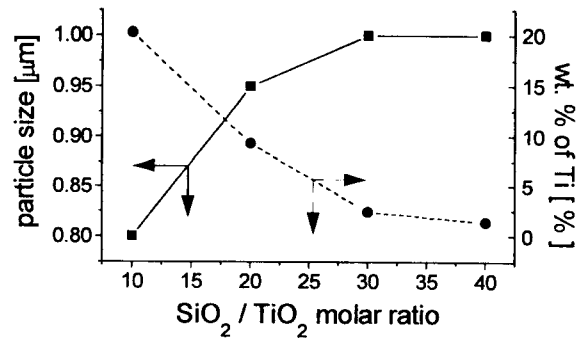


Fig. 5. Particle size and atomic compositions in different molar ratio of  $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ .

며, 그 농도에 따른 최종입자의 크기변화를 살펴봄으로써 암모니아가 복합입자의 크기를 제어할 수 있는 중요한 실험변수인가를 알아보았다. TEOS의 농도를 앞의 실험 3.1.에서 단분산성이 좋았던 0.3M로 고정시키고, 암모니아의 반응초기시 농도를 0.2M, 0.4M, 0.6M로 변화시켜 실험하였다. 반응물의 농도는 Table 1에 나타내었다.

Stöber의 실험에 의하면 암모니아의 농도를 변화시킴으로써 0.05 $\mu\text{m}$ 부터 1 $\mu\text{m}$ 에 이르는 다양한 크기의 입자를 얻을 수 있을 뿐만 아니라 이때 암모니아의 농도를 증가시키면 따라 생성되는 입자의 크기가 단조증가를 보이는 것으로 알려졌는데 본 실험결과에서도 Fig. 4.에서 볼수있듯이 암모니아의 농도가 증가할 때((a)0.2M, (b)0.4M, (c)0.6M) 생성된 복합입자의 크기가 커지는 경향이 있음으로써  $\text{SiO}_2$ 를 제조하는 Stöber의 실험에서와 같은 경향을 보였다. 또한 본 실험에서 사용한 암모니아의 농도범위 (0.2-0.7M)에서 입자의 형태가 구형으로 유지되는 것을 볼수 있다. 그러므로  $\text{SiO}_2 / \text{TiO}_2$  복합분말 제조에 있어서도 암모니아가 최종입자의 형태를 구형으로 만드는 morphological catalyst 로써 작용성이 있음을 보였다. 작은 최종입자를 얻기 위해서는 암모니아의 농도가 작을수록 좋았으며, 암모니아의 농도를 주어진 범위 내에서 조절함으로써 최종입자의 크기를 조절하는 것이 가능하다고 볼 수 있다. Sol-gel process에 의한 미립자제조에 있어서 암모니아의 영향에 대해서는 Stöber 등에 의해 처음 발표된 후 많은 과학자들에 의해 연구되었으나 아직까지도 정확한 mechanism이 밝혀지지 않고 있는 실정이다. 복합입자 표면에 대한 Si와 Ti의 EDS 성분분석 결과 또한 암모니아의 농도가 0.4M 이상인 경우는 입자 내의 Ti 원소의 함량이 거의 일정하게 유지되는 것을 알 수 있었다. 암모니아의 농도변화에 따른 입자 크기 및 성분 변화의 그래프는 Fig. 3.와 같으며, SEM 사진은 Fig. 4.에 실었다.

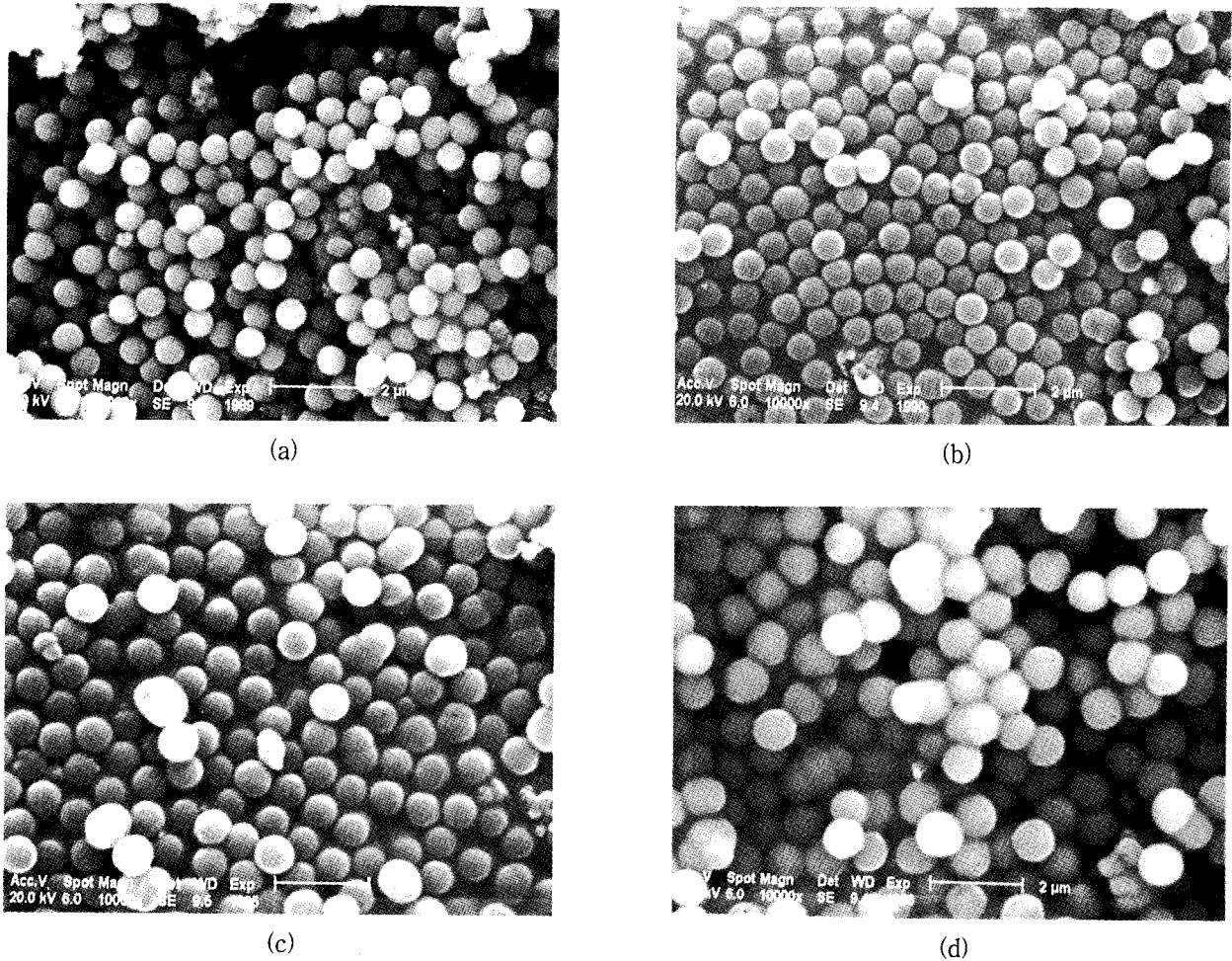


Fig. 6. Scanning electron microscopy of SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> composite powders in different SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> molar ratio.  
SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> = (a) 10 (b) 20 (c) 30 (d) 40

### 3.3. SiO<sub>2</sub> / TiO<sub>2</sub> 비 변화 실험

앞서의 실험에 의하면 입자의 크기가 가장 안정적으로 얻어지는 암모니아의 농도가 0.7M이었는데 이는 R. Lindberg 등의 실험결과와 일치한다. 또한 단분산의 입자를 얻기 위한 TEOS의 농도가 0.3M이었으므로 TEOS의 농도를 0.3M, H<sub>2</sub>O는 6.0M, 암모니아의 농도를 0.7M로 고정시키고 TiO<sub>2</sub> seed (21nm)의 양을 변화시키는 실험을 하였다. 여기서 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>의 비율 40, 30, 20, 10으로 변화시켜 실험하였다.

본 실험에 의하면 TiO<sub>2</sub>의 양이 늘어나면 최종 입자의 크기가 작아지는 경향을 보였다. 이것은 seed의 수가 증가할수록 TEOS의 가수분해 및 축합에 의한 seed의 성장이 여러 개의 seed에 분산되어 일어나므로 각각의 seed를 성장시키는 SiO<sub>2</sub>의 양은 상대적으로 감소하여 최종 입자의 크기가 작아진다고 설명될 수 있다. 반면에 TiO<sub>2</sub>의 양이 작을 때 (SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> = 40, 30), 입자의 응집

이 더 많이 되는 것을 볼 수 있었다. 이것은 seed의 양이 매우 작을 때 기존의 seed 외에 TEOS끼리 가수분해 및 축합되어 규칙성이 없는 입자가 생성된다고 할 수 있다. 그러므로 seed의 양이 많을수록 크기가 작고 응집이 없는 입자를 얻을 수 있었다. 또한 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>가 감소할수록 즉, TiO<sub>2</sub>의 양이 증가할수록 입자 내의 Ti 원소의 함량이 증가하는 경향을 보임으로써 반응 초기의 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>비의 예상치와 비례하였다. Fig. 5와 Fig. 6에 SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>양에 대한 입자 크기의 변화 및 성분 변화에 대한 그래프와 SEM 사진을 각각 나타내었다.

### 3.4. TiO<sub>2</sub> seed의 크기 변화 실험

TiO<sub>2</sub> seed 종류 및 크기 변화에 따른 최종 입자의 크기, 형태 및 Ti의 함량을 알아보는 실험을 하였다. [TEOS]=0.3M, [NH<sub>4</sub>OH]=0.7M, SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>=100/1로 고정하고 TiO<sub>2</sub> seed의 크기를 30nm (MT-500B : TAYCA),

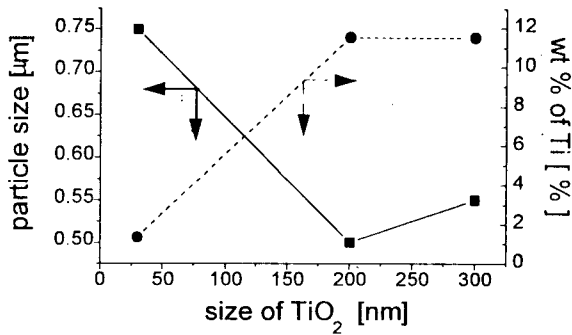


Fig. 7. Particle size and atomic compositions indifferent size of TiO<sub>2</sub> seed.

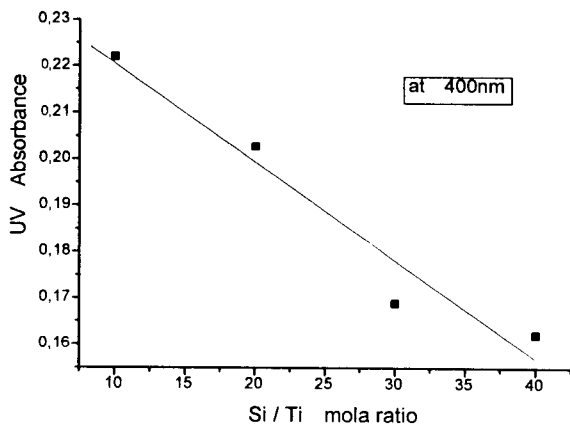


Fig. 8. UV Absorbance of Composite powders by Spectronic 20.

200nm (T-28 : Nihon Kolmar), 300nm (T-28 : WCD)로 변화시켜 실험하였다.

이 실험에서는 Fig. 7.에서 볼 수 있듯이, TiO<sub>2</sub> seed의 크기가 최종 입자의 크기와 비슷한 200nm, 300nm의 경우 그 최종 입자에서의 Ti 원소 함량이 정량적으로 검출되었으며, 상대적으로 최종 입자의 크기와 차이가 많이 나는 30nm의 seed를 사용한 경우 최종 입자 내의 TiO<sub>2</sub> 함량이 정량적으로 검출되지 않음을 알 수 있다. 작은 seed를 사용한 경우, seed의 크기와 생성입자의 크기가 많이 차이난데, 이 경우 우리가 예상한 core-shell 구조보다는 한 입자 내에 여러 개의 seed 입자가 들어가 있는 구조를 갖는 복합입자가 형성됨을 알 수 있으며, 이 경우 한개의 복합입자 내에 일정한 개수의 seed 입자가 들어가지 못하며, 이에 따라 조성이 불규칙한 복합입자가 얻어진다고 볼 수 있다. 그러나 평균적으로는 Si/Ti의 원소 비는 거의 일정하다고 할 수 있을 것이다. 그러므로 core-shell 구조를 갖는 TiO<sub>2</sub> seed 입자를 얻기 위해서는 최종 입자와 크기가 비슷한 seed 입

자를 사용하는 것이 바람직하다. 수십 nm의 seed 입자를 사용했을 경우 그 보다 약간 큰 수십 nm의 최종입자를 얻어야 core-shell 구조를 가지리라 생각된다. Seed의 종류 및 크기 변화에 따른 최종 입자의 크기 및 Ti의 함량 변화에 대한 결과 그래프를 Fig. 7.에 나타내었다.

### 3.5. UV 흡수 측정 실험

300nm seed를 이용하여 Si/Ti의 몰 비율을 10, 20, 30, 40으로 변화시켜 실험한 후, 그 분말들을 에탄올 40 ml에 각각의 시료 0.01g을 넣고 5분간 교반하여 분산시킨 후 UV 흡수를 Spectronic 20를 이용하여 TiO<sub>2</sub>의 흡수율이 상대적으로 높은 400nm에서 측정하였다. Fig. 8.은 Si/Ti 몰비 변화, 즉 입자 내의 Ti 원소함량에 따른 UV 흡수에 대한 그래프로써 TiO<sub>2</sub> seed가 증가하면서 선형적으로 UV 흡수가 증가하는 결과를 나타내며, 이 결과는 seed인 TiO<sub>2</sub>의 함량이 증가할수록 UV 흡수가 증가한다는 예상과 일치하였다.

## 4. 결 론

본 실험에서 얻은 결론은 크게 다음의 두 가지로 정리된다.

입자 크기 측면에서 보면, TEOS의 농도가 증가함에 따라 최종 입자의 크기가 커지는 경향을 보였고, 복합입자의 합성에서도 암모니아가 구형입자를 형성시키는 morphological catalyst로써의 작용성이 있으며, 암모니아의 농도가 증가함에 따라 최종 입자의 크기가 커지는 경향을 보였으며, TiO<sub>2</sub> seed의 양의 감소에 따라 최종 입자의 크기가 커지는 경향을 보였다. 또한 TiO<sub>2</sub> seed의 크기가 작아지면 최종 입자의 크기가 커지는 경향을 보였다.

복합 입자 내에서의 TiO<sub>2</sub> seed의 함량 조사에서는 작은 크기의 TiO<sub>2</sub> seed를 사용했을 때 복합 입자 내에서 검출되는 Ti 원소의 양은 반응초기의 Si/Ti와 많은 차이를 보였다. 이것은 seed 입자와 최종 입자의 크기 차이가 많이 나는 경우에는 다핵구조를 갖는 복합입자가 얻어지며, 복합입자에서의 TiO<sub>2</sub>의 양을 조절하기가 어렵다고 할 수 있다. 이에 반해 큰 입자를 seed로 사용했을 때에는 복합입자 내에서 Ti의 원소 함량이 일정하게 검출되었고 사용한 seed 입자의 크기와 생성된 복합입자의 크기를 비교할 때 생성된 복합 입자가 core-shell 구조를 가짐을 확인할 수 있다. 또한 UV 흡수측정 결과, 복합입자 내에서도 사용된 TiO<sub>2</sub>의 농도에 비례하여 UV 흡수가 증가함으로써 복합입자 내에서도 TiO<sub>2</sub>의 성질을

유지하고 있다고 할 수 있다.

따라서 제어된 입자크기 및 성분함량을 갖는 core-shell 구조의 복합입자를 제조하기 위해서는 출발물질인 TEOS의 농도 및 촉매인 암모니아 농도의 조절과 더불어 seed로 사용되는 입자의 적절한 크기 선정이 필수적이라 할 수 있다.

## 감 사

본 연구는 과학재단의 충남대학교 무기 신소재 SRC 장려센터 (Center for Inorganic Material Chemistry) 및 한양대학교 신소재공정공학원의 지원에 의해 수행된 연구로 이에 감사를 드립니다.

## 참 고 문 헌

1. C. J. Brinker and G. W. Scherer, Sol-Gel Science, Academic Press Inc. (1991).
2. Larry L. Hench and Jon. K. West, Chemical Processing of Advanced Materials, Jhon Wiely & Sons, Inc. (1992).
3. R. K. Iler, The Chemistry of Silica, Jhon Wiely (1979).
4. W. Stöber and A. Fink, E. Bohn, *J. Coll. Interface Sci.* **26**, 62(1968).
5. M. N. Rahaman, Ceramic Processing and Sintering, Marcel Dekker, Inc. (1995).
6. C. G. Tan, B. D. Bowen and N. Epstein, *J. Colloid and Interface Sci.* **118**, (1987).
7. Larry L. Hench and Jon. K. West, *Chem. Rev.* **90**, 33(1990).
8. Takashi Ogihara, Hidenori Nakajima, Teruaki Yanagawa, Nobou Ogata and Kokichi Yoshida, *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**, 2263(1991).
9. Qunyin Xu and Marc A. Anderson, *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 1939(1994).
10. Ritva Linberg, Johan Sjöram and Göram Sundholm, *Colloids and Surfaces A.* **99**, 79(1995).
11. G. H. Bogush, M. A. Tracy and C. F. Zukoski, *J. Non-Cryst. Solids*, **104**, 95(1988).
12. G. H. Bogush, C. F. Zukoski, *J. Colloid Interface Sci.*, **40**, 1(1991).
13. S. Sakka, K. Kamiya, K. Makita and Y. Yamamoto, *J. Non-Cryst. Solids*, **63**, 223(1984).
14. S. Sakka and K. Kamiya, *J. Non-Cryst. Solids*, **48**, 31(1982).
15. A. van Blaaderen and A. Vrij, *J. Colloid Interface Sci.*, **156**, 1(1993).
16. Jackie Y. Ying and Jay B. Benziger, *J. Am. Ceram. Soc.*, **76**, 2571(1993).
17. Jackie Y. Ying and Jay B. Benziger, *J. Am. Ceram. Soc.*, **76**, 2561(1993).
18. Sang H. Hyun and Boem S. Kang, *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**, 3093(1994).
19. Anne Bagley Hardy, Wendell E. Rhine and H. Kent Bowen, *J. Am. Ceram. Soc.*, **76**, 97(1993).
20. Wei-Heng Shih, David Kisailus and Yen Wei, *Material Letters*, **24**, 13(1995).
21. B. E. Yoldas, *J. Mater. Sci.*, **21**, 1080(1986).
22. J. H. Jean and T. A. Ring, *Langmuir* **2**, 151(1986).
23. Eric A Barringer and H. Kent Bowen, *Communication of the Am. Ceram. Soc.*, c-199(1982).
24. Jee Loon Look and Charles F. Zukoski, *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**, 1587(1992).
25. A. K. Van Helden, J. W. Jansen and A. Vrij, *J. Colloid and Interface Sci.*, **81**, 354(1981).