

## 음향화학법으로 니켈을 코팅한 알루미나의 제조 및 분석

김진우 · 최성우<sup>1</sup> · 이창섭<sup>\*</sup>

계명대학교 자연대 화학과, <sup>1</sup>에너지환경과학과  
(2008. 9. 10. 접수, 2011. 3. 11. 승인)

### Preparation and analysis of nickel-coated alumina by sonochemistry

Jin-Woo Kim, Sung-Woo Choi<sup>1</sup> and Chang-Seop Lee<sup>\*</sup>

*Department of Chemistry, Keimyung University, Deagu 704-701, Korea*

*<sup>1</sup>Department of Energy Environmental Science, Keimyung University, Deagu 704-701, Korea*

(Received September 10, 2008; Accepted March 11, 2011)

**요 약:** 알루미나에 니켈을 코팅하는 효율을 높이기 위하여 졸-겔법을 이용하여 비결정성 알루미나를 제조한 후, 음향화학법을 이용하여 니켈을 알루미나에 코팅하여 미립자를 제조하였다. 니켈을 코팅한 알루미나 미립자는 여러 가지 소성온도(500 °C, 1,000 °C), 니켈용액의 농도(0.01 M~0.2 M), 초음파반응시간(30 min, 2 h)의 조건에서 제조하였다. 제조한 미분체는 X-Ray Diffractometer (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM), Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy (ICP-AES), Particle Size Analyzer (PSA)로 특성을 분석하였다. 니켈용액의 농도가 진해짐에 따라 그리고 초음파반응시간이 길수록 니켈의 코팅량이 증가하였다. 알루미나에 니켈을 코팅하는데 있어 1000 °C의 소성온도, 0.1 M의 니켈용액의 농도, 2시간의 초음파에 반응하였을 때 알루미나에 니켈이 가장 많이 코팅되었다. 그리고 평균 입자의 크기는 835.9~986.7 nm였다.

**Abstract:** Ni-coated alumina was prepared by sonochemical method. To increase an efficiency of Ni coating on alumina, amorphous alumina was prepared by sol-gel method and Ni was coated to fine particles of alumina. Ni-coated alumina was prepared from various calcination temperatures (500 °C, 1,000 °C), concentrations of Ni solution (0.01 M~0.2 M) and sonochemical reaction times (30 min, 2h). The prepared fine particles were characterized by X-Ray Diffractometer (XRD), Scanning Electron Microscope (SEM), Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy (ICP-AES), and Particle Size Analyzer (PSA). The coating amount of Ni increased, as Ni concentration and ultrasonication time increased. The maximum amount of Ni was coated to fine particles of alumina, when Ni-coated alumina was prepared with 0.1 M concentration of Ni solution for 2 h of sonication time at 1000 °C of calcination temperature. The average particle size was in the range of 835.9 to 986.7 nm.

**Key words:** sol-gel process, sonochemistry, Ni-coating, alumina

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)53-580-5192 Fax : +82-(0)53-588-3408

E-mail : surfkm@kmu.ac.kr

## 1. 서 론

현재까지 미분체를 제조하는 방법은 주로 기계적인 밀링에 의하여 이루어져왔다. 그러나 이 방법으로 미분체를 제조할 경우 입자크기의 조절이 힘들며, 다성분계 미분체를 제조할 경우 적절한 비율로 혼합하는데 어려움이 있다. 또한 이 방법은 제조과정 중 불순물이 첨가될 가능성이 있어 순수한 미분체를 제조하기 어렵다. 졸-겔법은 이러한 문제를 해결하기 위하여 개발된 방법이다. 졸-겔법에서 적용되는 반응공정은 제조하고자 하는 물질이 녹아있는 출발용액에 산, 염기, 촉매나 열을 가해줌에 따라 졸-겔화가 이루어지고 이렇게 형성된 졸-겔을 건조, 소성함으로써 미분체를 제조하는 방법이다. 이 방법은 액체용액에서 직접 미분체를 제조하게 되므로 불순물의 유입을 막을 수 있으며, 다성분계 미분체를 제조할 때 성분비의 조절이 가능하고 균일하게 혼합할 수 있는 장점이 있다. 졸-겔법은 관점에 따라 여러 가지로 분류할 수 있는데, 그 중 대표적인 방법은 졸내의 입자 형태에 따라 분류한 Johnson 분류법이 일반적이다.<sup>1</sup> 졸-겔법은 크게 polymerized alkoxide법과 colloidal sol법이 있다. polymerized alkoxide법은 금속산화물을 제조하는데 사용되며, colloidal sol법으로 제조한 졸은 1000 Å 이하의 입자를 제조하는데 사용된다. 이 때 분산매는 HCl, HNO<sub>3</sub>, NH<sub>4</sub>OH 등과 같은 전해질에 의하여 겔화가 촉진된다.<sup>2</sup>

음향화학법은 초음파(20 kHz~2 MHz)를 이용하여 화학반응을 가속화 내지는 촉진시키는 방법이다. 초음파에 의한 화학반응은 초음파가 직접적으로 어떤 화학반응에 영향을 미치는 것이 아니라 용액 내에서 초음파 처리 시 생성된 기포의 공동(acoustic cavitation) 현상에 의한 것이다.<sup>3-4</sup> 초음파가 용액 속에 전파될 때 기포가 생성, 성장 그리고 터지는 단계를 거치게 되는데, 이 단계에서 충격파가 발생하게 된다. 이 충격파는 기포 내에서 생성 가능하며 이것이 기포내의 기상을 순간적으로 압축하여 열을 내 놓는다. 이 캐비테이션(cavitation)의 효과로 나타나는 현상을 hot spot이라고 하는데 5000 K 정도의 온도와 1000 기압 정도의 고압을 수 ns 정도의 시간 동안 유지하였다가 10<sup>9</sup> K/s 정도의 속력으로 급속히 냉각된다. 이러한 액상 내에서의 초음파 처리로 인해 생성되는 높은 에너지가 화학반응을 일으키는 원인이 된다.<sup>5-6</sup>

지금까지 음향화학적 방법을 이용하여 결정성 알루미늄과 결정성 실리카 위에 철, 코발트 등의 금속이

코팅된다는 것이 확인되었고 비결정성 알루미늄 위에 도 다양한 금속을 코팅하는 방법이 연구되고 있다.<sup>7-9</sup>

본 연구에서는 졸-겔법 중 polymerized alkoxide법으로 비결정성 알루미늄을 제조하였으며, 음향화학적 방법을 이용하여 비결정성 알루미늄 표면에 니켈을 코팅하였다. 또한 니켈용액의 농도, 초음파 반응시간, 소성온도를 조절하여 니켈을 코팅한 알루미늄 입자의 제조 시 최적의 합성조건을 조사하였으며, 제조된 니켈이 코팅된 알루미늄 입자의 결정상태, 형태 및 성분을 분석하였다.

## 2. 실험

니켈을 코팅한 알루미늄 미분체를 제조하는데 있어서 크게 두 부분으로 나누어서 실험을 수행하였다. 첫 번째는 코팅하기 위한 기질로서 비결정성 알루미늄을 제조하였고, 두 번째는 제조된 비결정성 알루미늄을 음향화학적 방법으로 알루미늄 표면에 니켈을 코팅하여 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체를 제조하였다. 니켈을 코팅하기 위하여 결정성 알루미늄을 대신하여 비결정성 알루미늄을 사용하는데, 이는 결정성 알루미늄의 경우 표면이 매우 단단하고 조밀하여 니켈 입자를 코팅하기가 어려운데 비하여, 비결정성 알루미늄의 경우는 표면의 조도가 상대적으로 높아 니켈을 코팅하는 데 유리한 장점이 있기 때문이다.<sup>10</sup> 또한 초음파 발생기를 이용하여 니켈이 용해된 용액에서 반응시켜 제조한 비결정형 알루미늄 표면에 니켈을 코팅하였다.

### 2.1. 비결정성 알루미늄의 제조

비결정성 알루미늄은 졸-겔법으로 제조하였다. 비결정형 알루미늄을 제조하기 위한 알루미늄 이온의 공급원으로는 aluminium isopropoxide (Acros Organics, Chemical Pure, USA)를 사용하였으며, 출발용액은 1-octanol (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First Grade), 1-butanol (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First Grade), acetonitrile (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First

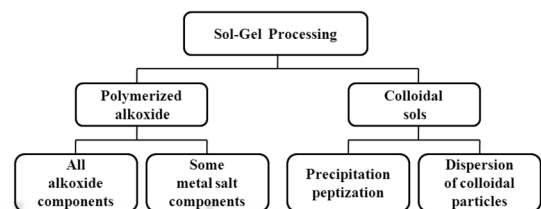


Fig. 1. The distribution diagram of Sol-Gel process.

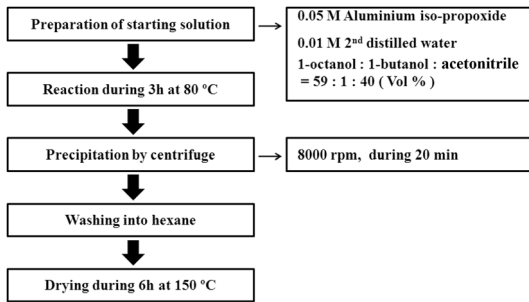


Fig. 2. The process diagram for the preparation of amorphous alumina.

Grade)을 각각 59:1:40의 비율로 혼합한 용매에 0.05 M aluminium isopropoxide와 이차증류수를 혼합하여 0.01 M로 제조하였다. 제조된 출발용액은 삼구플라스크에 넣고 3 h 동안 80 °C로 반응시켰다. 80 °C로 반응시키기 이전의 출발용액은 흰색의 혼탁한 콜로이드 용액이었으나 반응 후 용액은 투명한 졸 형태의 콜로이드 용액으로 변화되었다. 위의 반응으로 생성된 콜로이드 용액을 8000 rpm의 원심분리기를 이용하여 입자를 침강시켰으며, 침강된 입자를 n-hexane (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First Grade)으로 세척한 후, 150 °C에서 6 h 동안 충분히 건조하였다. 앞에서 언급된 비결정형 알루미늄의 제조공정은 Fig. 2에 나타나 있다.

## 2.2. 음향화학법으로 니켈을 코팅한 알루미늄의 제조

비결정성 알루미늄에 니켈을 코팅하기 위하여 음향화학반응을 수행하였다. 이 초음파 반응을 이용한 니켈 코팅 방법은 용액 내 비결정성 알루미늄이 고루 분산될 뿐만 아니라, 니켈이 알루미늄에 적절히 함침되고, 함침된 니켈입자에 니켈이 다시 성장하는 코팅의 과정을 짧은 시간에 수행하는 장점이 있다. 본 연구에서는 비결정성 알루미늄에 니켈을 코팅하는 조건을 출발용액의 니켈 농도와 초음파 반응시간 그리고 미분체의 조성 온도별로 구분하여 실험을 수행하였다.

출발용액은 ethanol (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First Grade)과 decalin (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First Grade)을 9:1로 혼합한 용액 1 L에 0.01 M, 0.1 M, 0.2 M의  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (Duksan Pure Chemical Co. Korea, First Grade)를 잘 혼합한 후, 10 g의 비결정성 알루미늄 10 g을 첨가하고 잘 분산되게 하였다. 출발용액 내 decalin은 비결정성 알루미늄의 분산을 용이하게 할 목적으로 첨가하였다.  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 는 decalin에

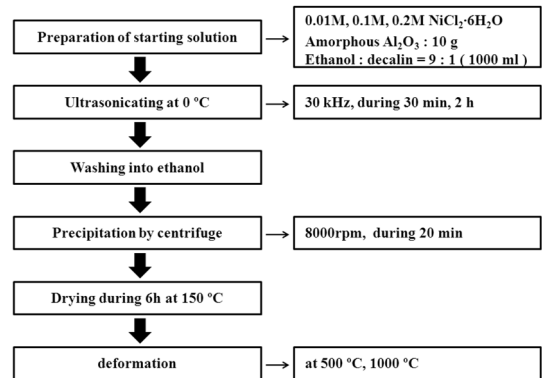


Fig. 3. The process diagram for the preparation of Ni coated alumina by sonochemical method.

잘 녹지 않으므로 기본 용매로서  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 과 decalin을 모두 잘 녹이는 ethanol을 사용하였다.

제조한 출발용액은 30 kHz로 조성된 초음파발생기를 이용하여 반응시간을 30 min과 2 h으로 변화하여 수행하였다. 이는 초음파반응이 출발용액 내의 비결정성 알루미늄 입자의 분산을 용이하게 할뿐만 아니라, 니켈이 알루미늄에 함침되고 함침된 니켈입자 위에서 입자성장이 일어나는 코팅과정을 활성화하기 때문이다. 또한 초음파반응 시 장시간 반응을 하게 되면 초음파발생장치가 과열되어 실험을 수행할 수 없게 되므로 반응용조의 온도를 0 °C이하로 유지한 상태에서 실험을 수행하였으며, 본 연구에서는 얼음을 채움으로써 반응용조의 온도를 0 °C이하로 유지하였다.

초음파반응을 수행한 용액을 8000 rpm의 원심분리기에 침강하였고, 침강된 입자를 150 °C에서 6 h 동안 건조하였으며, 건조한 미분체는 500 °C와 1000 °C에서 소성하였다. 음향화학법을 이용한 비결정성 알루미늄에 니켈을 코팅할 때의 제조공정도를 Fig. 3에 나타내었다.

## 2.3. 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체의 분석

합성된 미분체의 상 분석은 X-선회절분석기(X-Ray Diffractometer : MAC,  $\text{MO}_3\text{-XHF}$ , Japan)를 이용하여  $20^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$ 의 범위에서 scanning speed는 50 deg/min의 조건으로 분석을 수행하였으며, 미분체의 평균입자크기는 입도분석기(Particle Size Analyzer : SHIMADZU, SAC P3, Japan)를 이용하여 측정하였다. 또한 입자의 크기와 형태는 주사전자현미경(Scanning Electron Microscopy : SEM, Jeol, JSM-5400, Japan)을 이용하여 조사하였으며, 합성된 미분체의 성분은 유도

결합플라즈마-원자방출분광법(Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectroscopy: ICP-AES, JY 50P, Jobin Yvon, France)으로 분석하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. X선 회절 분석

##### 3.1.1. 소성온도 효과

음향화학법을 이용해서 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체의 소성온도에 대한 XRD 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 이 그림에서 니켈용액의 농도를 0.1 M, 초음파반응시간을 2 h로 유지하고, 150 °C에서 건조 후 500 °C (b), 1000 °C (c)의 소성온도에서 각각 제조한 미분체와 비결정형 알루미늄의 특성을 비교 분석하였다.

Fig. 4에서 알 수 있듯이 비결정형 알루미늄의 경우 (a)는 알루미늄의 특성을 나타내는 뚜렷한 회절봉우리가 없으나, 음향화학을 이용하여 니켈을 코팅한 알루미늄의 경우는 500 °C(b)에서는 NiO를 나타내는 특성 봉우리가 형성되었으며, 1000 °C(c)로 소성온도를 증가시키에 따라 더욱 뚜렷한 봉우리( $2\theta=34.621, 42.572, 62.202, 76.434$ )를 형성함이 관찰되었다. 500 °C로 소성하였을 경우에는 알루미늄과 니켈이 고체화학반응을 통해서 형성된  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 가 관찰되었으며( $2\theta = 37.009$ ) 이로써 알루미늄 위에 니켈이 코팅되었다는 것을 알 수 있었다. 1000 °C로 소성하였을 경우에는 NiO 및  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 의 결정 특성을 나타내는 회절봉우리의 세기가 더욱 증가하였으므로 이로써 알루미늄 미분체 표면 위에 Ni이 코팅되었음을 확인할 수 있었다. 또한

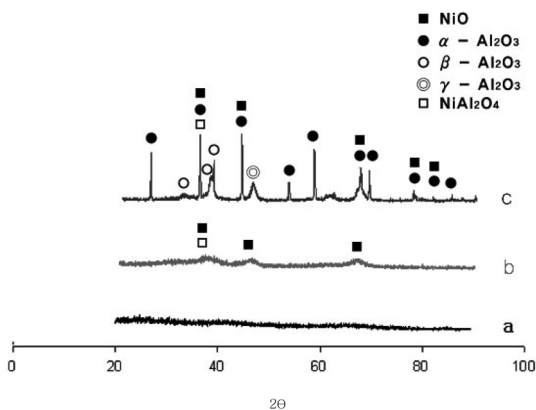


Fig. 4. X-ray diffraction pattern of powders prepared by sonochemical method at various temperatures of calcination for 2 hs' sonication in 0.1 M Ni solution. (a) amorphous alumina, (b) 500 °C, and (c) 1000 °C.

알루미늄 봉우리의 경우, 500 °C까지는 알루미늄의 상 형태를 관찰하지 못하였으나 1000 °C에서  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ -알루미늄 상의 형태가 관찰되었는데, 이로써 무정형 알루미늄이 결정성 알루미늄으로 상전이가 이루어졌음을 알 수 있었다. 여기서  $\alpha$ -알루미늄의  $2\theta$ 값은 27.506, 35.950, 42.738, 52.030, 57.432, 62.202, 76.434, 83.207에서 관찰되었으며,  $\beta$ -알루미늄의  $2\theta$ 값은 32.565, 35.438, 37.422에서 관찰되었고,  $\gamma$ -알루미늄의  $2\theta$ 값은 46.724에서 관찰되었다.

##### 3.1.2. 농도효과

Fig. 5는 음향화학법을 이용하여 알루미늄 미분체에 니켈을 코팅할 때 가장 코팅 효율이 높은 조건인 초음파 반응시간을 2 h로 하고 소성온도를 1000 °C로 설정하고 니켈용액의 농도를 0.01 M (b), 0.1 M (c), 0.2 M (d)로 변화시켜 제조한 알루미늄 미분체의 X선 회절분석결과이다.

Fig. 5에서 볼 수 있듯이, 0.01 M의 니켈용액에서 제조한 미분체의 경우는  $\alpha$ -알루미늄의 봉우리만 관찰되는 반면, 니켈용액의 농도가 0.1 M (c), 0.2 M (d)로 증가시켰을 때는  $\alpha$ -알루미늄의 특징을 나타내는 회절봉우리의 세기는 일정하였으나 NiO 봉우리와  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$  봉우리가 새롭게 성장됨을 관찰할 수 있었다. 따라서 초음파 코팅 시 0.1 M 니켈용액과 0.2 M 니켈용액으로 하였을 경우를 비교한 결과, 니켈용액의 농도가 증

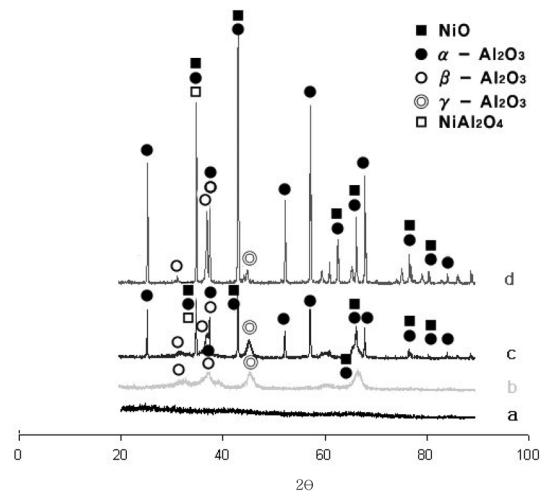


Fig. 5. X-ray diffraction pattern of powders prepared by sonochemical method in various concentrations of Ni solution for 2hs' sonication followed by calcination at 1000 °C. (a) amorphous alumina, (b) 0.01 M Ni solution, (c) 0.1 M Ni solution, and (d) 0.2 M Ni solution.

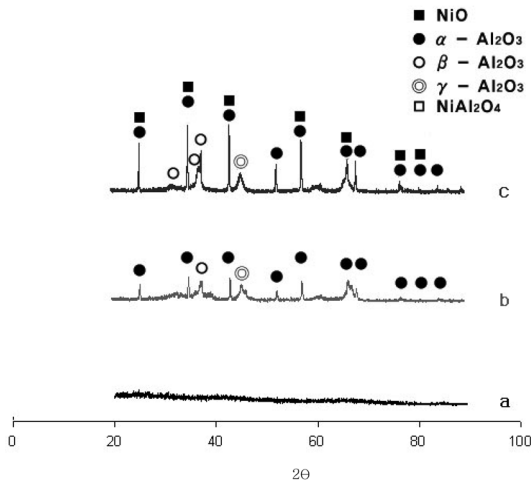


Fig. 6. X-ray diffraction pattern of powders prepared by sonochemical method for various sonication times in 0.1 M Ni solution followed by calcination at 1000 °C. (a) amorphous alumina, (b) 30 min, and (c) 2 h.

가함에 따라 알루미늄의 기준 봉우리 이외에 NiO 봉우리와  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$  봉우리가 상대적으로 증가되었음을 관찰할 수 있었다.

### 3.1.3 초음파 반응시간 효과

Fig. 6은 음향화학법을 이용하여 알루미늄에 니켈을 코팅함에 있어 니켈용액의 농도를 0.1 M로 하고 소성 온도를 1000 °C로 고정하였을 때 니켈용액에서 초음파반응시간을 30 min(b), 2 h(c)으로 하여 제조한 미분체의 X-선 회절분석 결과이다.

이 그림에서 볼 수 있듯이, 30 min 동안 초음파반응을 한 미분체의 경우는 다양한 상의 알루미늄 봉우리만이 관찰된 반면에, 2 h 동안 초음파반응을 한 미분체는 다양한 상의 알루미늄 봉우리 이외에 NiO 봉우리와  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$  봉우리가 관찰되었다.  $\alpha$ -알루미늄의 2 $\theta$ 값은 27.506, 35.950, 42.738, 52.030, 57.432, 62.202, 76.434, 83.207에서 나타났으며 NiO의 2 $\theta$ 값은 34.621, 42.572, 62.202, 76.434로 비슷한 값을 나타내므로 구별하기가 어려우나 기질로 사용한 알루미늄을 먼저 제조하고 그 위에 Ni을 코팅하였기 때문에 대부분의 Ni은 NiO와  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$ 의 형태로 확산 없이 알루미늄에 코팅되어 입자성장이 진행되었으리라 생각된다. 0.1 M 이하의 니켈용액에서 초음파처리 시간을 충분히 주면 알루미늄에 니켈이 코팅되는 반응이 활성화되어 코팅되는 니켈의 양이 증가한다고

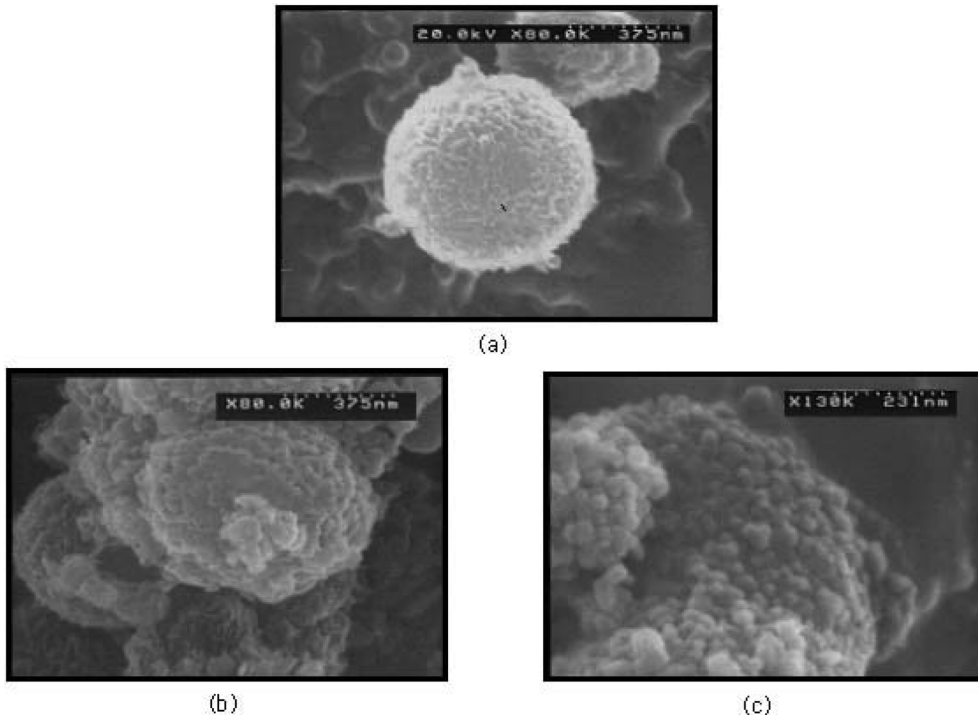


Fig. 7. SEM photographs of prepared powders prepared by sonochemical method at various temperatures of calcination for 2hs' sonication time in 0.1 M Ni solution. (a) amorphous alumina, (b) 500 °C, and (c) 1000 °C.

생각된다.

### 3.2. SEM 결과

#### 3.2.1. 소성온도 효과

음향화학법을 이용하여 알루미늄에 니켈을 코팅함에 있어 니켈용액의 농도를 0.1 M로 하고 니켈용액에서 초음파반응시간을 2 h으로 하였을 때 소성온도를 500 °C(b), 1000 °C로 하여 제조한 미분체의 SEM사진을 Fig. 7에 나타내었다. (a)의 경우는 비결정형 알루미늄의 형상이고 (b), (c)는 각각 500 °C, 1000 °C에서 소성한 니켈을 코팅한 알루미늄 입자에 대한 SEM형상이다. 비결정성 알루미늄 입자는 대체로 구형을 이루며 표면의 형상이 완만하게 나타난 반면에, Fig. 5(d)와 비교하여 보면, 소성온도가 500 °C, 1000 °C로 올라감에 따라 알루미늄 입자 위에 NiO입자 및 NiAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>가 뚜렷한 구형의 형상을 이루면서 입자성장이 진행되었음을 확인할 수 있었다.

#### 3.2.2. 농도효과

Fig. 8은 음향화학법을 이용한 알루미늄 미분체에 니켈을 코팅함에 있어, 초음파반응시간을 2 h으로 하며 소성온도를 1000 °C로 고정하고 니켈용액의 농도를 0.01 M(a), 0.1 M(b), 0.2 M(c)로 하여 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체의 형상을 관찰한 SEM사진이다.

(a)와 (b)를 비교하여 볼 때 (a)보다는 (b)에서 알루미늄에 함침하여 성장한 NiO입자가 크고 뚜렷한 것을 관찰할 수 있는데, 이로써 니켈용액의 농도가 진해질수록 코팅의 효율이 높아진 것을 알 수 있었다. (c), (d)의 경우는 (a)와 (b)에서 관찰한 것과는 다른 형상을 발견하였는데, (c)에서는 (a), (b)와 비교할 때, (a), (b)의 미분체 직경이 약 200 nm인데 비하여 (c)미분체 직경은 1600 nm로 현격히 입자가 성장하였고, 입자의 형상이 구형에서 다각형 형태로 변환하였음을 관찰하였다. 또한 (d)에서는 (c)에서 관찰한 입자 이외에 왼쪽에 작은 입자들이 관찰되었는데, 이는 초음파반응과정과 소성과정에서 알루미늄 기질 위에 코팅된 NiO

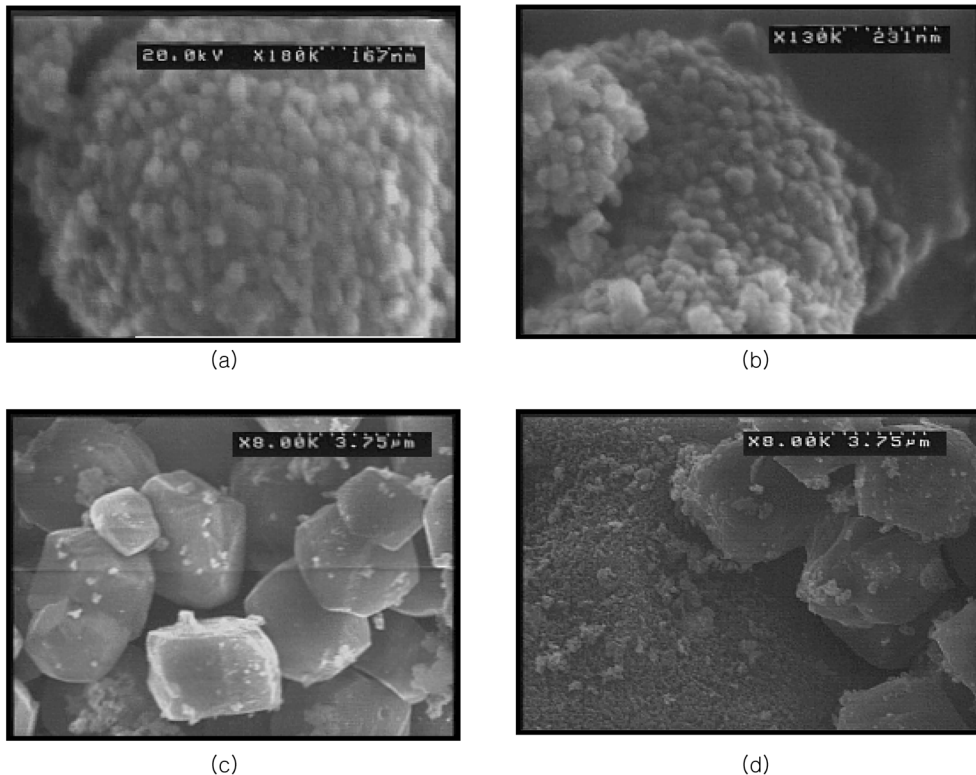


Fig. 8. SEM photographs of powders prepared by sonochemical method in variation concentrations of Ni solution for 2hs' sonication time followed by calcination at 1000 °C. (a) 0.01 M Ni solution, (b) 0.1 M Ni solution, and (c), (d) 0.2 M Ni solution.

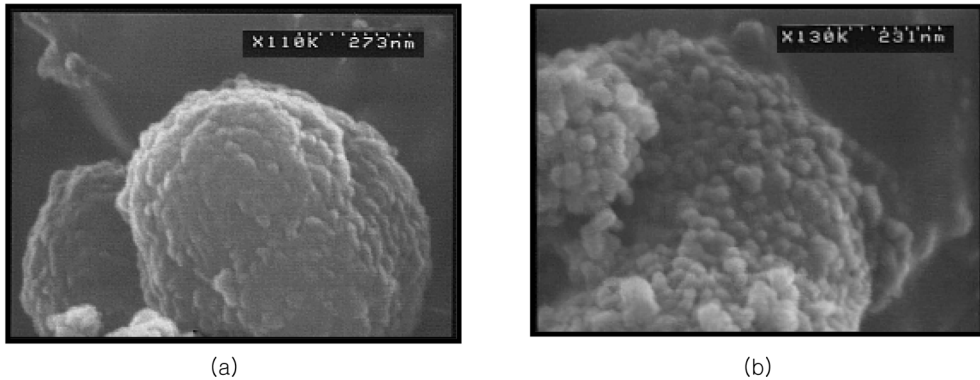


Fig. 9. SEM photographs of powders prepared by sonochemical method for various sonication times in 0.1 M Ni solution followed by calcination at 1000 °C. (a) 30 min, and (b) 2 h.

입자가 작은 입자상으로 형성되어 떨어져 나온 것으로 생각된다. Fig. 8(d)는 초음파반응시간을 2 h, 소성온도를 1000 °C로 고정하였을 때, Ni용액의 농도가 0.2 M인 조건에서 제조한 시료에 대한 SEM 사진이다.

### 3.2.3. 초음파 반응시간 효과

Fig. 9는 음향화학법을 이용하여 알루미늄에 니켈을 코팅함에 있어 니켈용액의 농도를 0.1 M로 하고 소성온도를 1000 °C로 고정하였을 때, 니켈용액에서 초음파 반응시간을 30 min(a), 2 h(b)으로 하여 제조한 미분체의 초음파 반응시간의 효과를 관찰한 SEM 결과이다.

(a)는 30 min 동안 초음파반응을 시켜 제조한 미분체의 형상이다. 이 그림에서는 Fig. 7(a)의 비결정형 알루미늄의 형상과 비교할 때, 차이가 거의 없음을 알 수 있다. 그러나 (b)는 2 h 동안 초음파반응을 한 알루미늄 미분체의 형상인데, 알루미늄 미분체 표면 위로 구형의 NiO 및 NiAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>가 코팅된 것이 관찰되었으며, 이는 Fig. 5의 XRD 결과와도 잘 일치한다.

### 3.3. ICP-AES 결과

음향화학법을 이용해서 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체를 제조함에 있어 니켈용액의 농도효과와 초음파 반응시간 효과에 따른 미분체의 성분변화를 ICP-AES로 분석하였으며 Ni/Al 성분비를 Table 1에 나타내었다.

Table 1에서 볼 수 있듯이 니켈용액의 농도가 증가할수록 알루미늄 미분체 표면에서의 니켈의 코팅 효율이 증가하였으며, 같은 니켈 농도 조건에서 초음파 반응시간이 증가할수록 Al에 대한 니켈의 성분비가 증가함을 알 수 있었다. 니켈용액의 농도가 0.2 M 이

Table 1. Inductively coupled plasma-atomic emission spectroscopic data of powder prepared by sonochemical method with the various sonication time followed by calcination at 1000 °C, in various Ni concentrations

Concentration of nickel solution [M]	Ultrasonic reaction time [h]	Component ratio (Ni/Al)[%]
0.01	0.5	5.30/94.70
	2	10.10/89.90
0.1	0.5	13.63/86.37
	2	18.91/81.09
0.2	0.5	38.67/61.33
	2	50.82/49.18

고 초음파 반응시간이 2 시간일 때가 Ni/Al의 함량비가 50.82/49.18로서 코팅효율이 가장 높았으며 이는 XRD의 결과와도 잘 일치하였다.

### 3.4. PSA 결과

음향화학법을 이용해서 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체를 제조함에 있어 Ni농도효과와 초음파 반응시간 효과에 따른 미분체의 입자크기를 PSA로 측정하였으며, 측정된 미분체의 평균입자크기를 Table 2에 나타내었다.

Table 2에서 보면 알 수 있듯이, 니켈용액의 농도와 초음파반응시간이 증가할수록 알루미늄 미분체의 평균입자크기가 증가하였다. 그러나 0.2 M 니켈용액에 2 h 동안 초음파반응을 하여 제조한 니켈코팅 미분체는 오히려 평균입자크기가 작아지는 것으로 나타났다. 이는 Fig. 8(d)의 SEM 사진에서 나타났듯이 0.2 M 니켈용액에 2 h 동안 초음파반응을 하여 제조한 니켈

Table 2. Particle size analysis data of powder prepared by sonochemical method with the various sonication time followed by calcination at 1000 °C, in various Ni concentrations

Concentration of nickel solution [M]	Ultrasonic reaction time [h]	Size of fine particles [nm]
0.01	0.5	835.9
	2	842.6
0.1	0.5	921.7
	2	986.9
0.2	0.5	934.7
	2	482.4
Amorphous alumina		1021.6

을 코팅한 미분체는 알루미늄에서 NiO 입자가 대부분 떨어져 나와 별도로 작은 입자를 형성하였기 때문이며, 이러한 작은 NiO 입자들의 기여도 때문에 위의 조건에서 제조한 미분체의 평균입자크기가 작게 관찰된 것으로 판단된다. 또한 비결정형 알루미늄의 평균입자크기가 1021.6 nm인데 비하여, 니켈을 코팅한 알루미늄의 평균입자크기는 835.9-986.7 nm로 더 작은 것으로 나타났는데, 이것은 초음파반응 중 입자의 경도가 상대적으로 낮은 비결정성 알루미늄이 초음파에 의하여 떨어져 나왔기 때문이라 생각된다.

#### 4. 결 론

본 논문에서는 음향화학적 코팅방법을 이용하여 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체를 제조하였다. 음향화학적 코팅은 비결정성 알루미늄을 기본입자로 하여 그 표면에 니켈을 여러 가지 조건의 소성온도(500 °C, 1000 °C), 니켈용액의 농도(0.01~0.2 M), 초음파 반응시간(30 min, 2 h)에서 코팅하였으며, 제조한 미립자는 XRD, SEM, ICP-AES, PSA 분석법으로 결정 상, 표면형태 및 성분을 분석하여 다음의 결과를 얻었다.

1. 음향화학법으로 니켈을 코팅한 알루미늄의 XRD 분석결과는 음향화학법을 사용하지 않은 니켈을 코팅한 알루미늄과 비교하였을 때 코팅의 효율이 증가하였으며,<sup>11</sup> 소성온도가 500 °C에서 1000 °C로 증가함에 따라 뚜렷한 NiO와 NiAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>의 결정상을 형성하였다. 또한 니켈용액의 농도가 증가함에 따라 니켈 코팅의 효율이 증가하였으며 초음파반응시간이 증가할수록 니켈 코팅량이 증가하였다.

2. SEM을 통한 형상분석에서는 XRD분석의 결과와 같이 니켈을 코팅한 알루미늄은 소성온도가 500 °C에서 1000 °C로 높아짐에 따라 더욱 뚜렷한 NiO 입자가 형성되었으며, 니켈용액의 농도가 증가함에 따라 니켈 코팅량이 증가하고 초음파반응시간이 길수록 니켈 코팅량이 증가하였다.

3. 0.2 M 니켈용액에 2 h 동안 초음파반응을 하였을 경우는 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체 이외에 10 nm이하의 NiO 미립자가 떨어져 나오거나 별도로 형성되었다. 따라서 니켈을 코팅한 알루미늄 미분체 제조에 있어 최적의 니켈용액 농도와 초음파반응시간은 0.1 M의 니켈농도에 2 h이 가장 적합한 것으로 나타났다.

4. 니켈을 코팅한 알루미늄 미립자의 조성구입자크기는 ICP-AES 분석 및 PSA 분석으로 확인하였으며, 니켈용액의 농도가 증가함에 따라, 초음파반응시간이 길수록 니켈/알루미늄 성분비가 증가하였으며, 입자크기도 증가하였다.

#### 참고문헌

1. S. C. Zhang and G. L. Messing, *J. A. Ceram. Soc.*, **73**(1), 61-66(1990).
2. D. W. Johnson, Jr., *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 1597, **12**, 64(1985).
3. K. S. Suslick and G. J. Price, *Annu. Rev. Mater. Sci.*, **29**, 295(1999).
4. H. Kawaoka, M. Hibino, H. Zhou and I. Honma, *J. Powder Sources*, **125**, 85(2004).
5. Yusaf G. Adwuyi, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **40**, 4681(2001).
6. J. I. Dornann, C. Djega-Mariadasson and J. J. Jave, *J. Magn. Magn. Mater.*, **12**, 104(1992).
7. C. Djega-Mriadasson, J. I. Dormann, M. Nogue, G. Viller and S. Sayouri, *IEEE Trans. Magn.*, **18**, 26(1990).
8. S. Ramesh, R. Prozorov and A. Gedanken, *Chem. Mater.*, **9**, 29(1997).
9. S. Ramesh, Y. Kolytyn, R. Prozorov and A. Gedanken, *Chem. Mater.*, **5**, 9(1997).
10. K. S. Suslick, S. B. Choe, A. A. Cichowlas and M. W. Grinsataff, *Nature*, 353(1991).
11. J. Lu, L. Gao, L. Gui and J. Guo, *Materials Chemistry and Physics*, **72**, 352-355(2001).