

알루미늄 호일 스크랩 再活用에 의한 플레이크 粉末 製造

†洪性賢 · 金柄淇

韓國機械研究院, 材料技術研究部

Preparation of Aluminum Flake Powder by Recycling of Foil Scrap

†Seong-Hyeon Hong and Byoung-Kee Kim

Korea Institute of Machinery and Materials, Materials Engineering
Department, Changwon 641-010, Korea

요 약

알루미늄 호일 스크랩의 건식 및 습식 볼밀링에 의하여 알루미늄 플레이크 분말을 제조하는 재활용 기술에 대하여 연구하였다. 볼밀링시 알루미늄 호일 스크랩들은 볼에 의한 미소 단조에 의하여 서로 층상으로 겹쳐지고 연신 되면서 적은 호일로 쪼개진 후 플레이크 분말로 변하였다. 이러한 스크랩중에 60 μm 이하의 호일 스크랩은 볼밀링에 의하여 알루미늄 페이스트로 재활용이 가능하였고 초기 호일의 두께가 작을수록 쉽게 플레이크 분말화가 가능하였다. 알루미늄 호일 스크랩의 볼밀링에 의하여 얻은 플레이크 분말을 함유하는 알루미늄 페이스트와 가스 분사된 분말을 초기원료로 사용하여 볼밀링한 플레이크 분말을 함유하는 페이스트를 유리판위에 페인팅한 후 외관 및 광택도를 비교한 결과, 그 특성은 유사하였다.

주제어: 호일 스크랩, 재활용, 플레이크, 알루미늄 분말, 페이스트

ABSTRACT

Recycling technology of aluminum foil scraps into aluminum flake powder by ball milling in dry or wet conditions was studied. Aluminum foils were laminated each other, elongated through microforging by the falling balls, fragmented into small foils and then changed into flake powder during ball milling. It is also possible to recycle foil scraps with thickness less than 60 μm into aluminum paste by wet ball milling. As initial foil thickness decreases, foil is easily milled to flake powder by wet milling in mineral spirits. The appearance and the opaque character of glass painted with aluminum paste obtained by wet milling of foils are similar to those of aluminum paste made by ball milling of gas atomized powder.

Key words: foil scrap, recycling, flake, aluminum powder, paste

1. 서 론

최근 금속 자원의 재활용에 의한 자원 및 에너지 절약이 환경 문제 및 경제적 관점에서 중요시되고 있다. 특히 알루미늄은 정련 과정에서 많은 에너지가 소요되므로 폐알루미늄의 재활용에 대한 중요성이 크게 부각되고 있다. 알루미늄 호일 생산업체에서 호일 제조과정

중 각 단계별로 압연후 모서리 절단시 발생하는 스크랩 발생량은 국내의 경우에 연간 약 8,500톤이며, 호일 스크랩은 재용해하는 원료로 재활용되고 있다. 그러나, 이러한 알루미늄 호일 스크랩은 순도가 높고 두께가 6.5~120 μm 정도로 얇으므로 기계적 분쇄에 의하여 보다 고부가가치의 알루미늄 플레이크 분말을 제조할 수 있는 가능성이 크다.

알루미늄 플레이크분말은 우수한 접착력과 특유의 은빛 색상을 띠는 특성을 가지기 때문에 지문 채취용, 경

† 2000년 6월 7일 접수, 2000년 7월 5일 수리

E-mail: shhong@kmail.kimm.re.kr

량 콘크리트 제조용 밸포제, 차량 페인트용 및 각종 산업 페인트용, 잉크 원료용, 플라스틱 가전제품의 코팅용 및 폭발제용 등으로 광범위하게 응용되고 있다.¹⁻⁵⁾ 알루미늄 플레이크 분말의 요구 특성은 용도에 따라 적절한 분말 크기 및 수면화산면적을 가져야 하는데, 현재 약 15~45 μm의 평균크기와 4,000~33,000 cm²/g의 수면화산면적을 갖는 플레이크 분말이 주로 많이 사용되고 있다.^{4,5)}

알루미늄 플레이크 분말의 제조 방법으로는 수분사나 가스 분사된 알루미늄 분말을 스템프 밀링에 의한 분쇄법, 건식 또는 습식 불밀링법, 습식 어트리션 밀링법, 습식 진동밀링 등이 있다.^{4,5)} 스템프밀링에 의한 건식 분쇄방법은 고전적인 방법으로 해머에 의하여 분쇄하면서 풍력으로 미분체를 연속적으로 반송시키면서 분급에 의하여 원하는 입도의 분말을 얻어내는 방법으로, 대기 중에서 작업하므로 별화 및 폭파위험이 높아 많이 사용하지 않는다. 수평식 불밀링법에서는 어트리션밀링법, 습식 진동밀링법에 비하여 볼의 충돌에너지가 작은 관계로 밀링시간이 장시간 소요되는 단점이 있지만, 제조된 플레이크 분말의 균일성이 우수하고 대량생산에 적합한 장점을 가지고 있기 때문에 현재 상용 공정으로 널리 활용되고 있다.^{4,5)}

건식 불밀링법은 불활성 반송 가스를 흘려주면서 회전 용기내의 볼에 의하여 분쇄된 분말을 용기 밖으로 배출한 후 분말을 분급하여 얻는 방식으로, 산소관리를 적절히 하면 폭파 위험성이 적다. 습식 불밀링법은 주로 알루미늄 안료업체에서 주로 행하여지며 원료, 강구, 분쇄조제, 유기용제를 장입하여 분쇄후 분쇄물에서 고액 분리를 하여 금속 분말이 60~85%인 페이스트를 얻는다. 얻어진 페이스트에서 유기용제를 완전히 제거하면 건조된 분말을 얻을 수도 있다. 습식 불밀링법은 유기용제속에서 분쇄하고 지방산이 분말 표면에 피복 흡착되어 산화를 방지하므로 도료용 플레이크 생산에 많이 사용되고 있다.^{3,4)}

본 연구에서는 알루미늄 호일 스크랩을 초기 원료로 사용하여 건식 분위기에서 볼 밀링하여 분체화 가능성 여부, 분체화의 거동 및 제조된 플레이크분말을 지문체 측정에 응용 가능성도 검토하였다. 한편, 두께가 다른 알루미늄 호일 스크랩을 습식 불밀링에 의하여 플레이크 분말 페이스트로 재활용이 가능한지를 조사하였고 얻어진 분말의 입도, 수면화산면적, 입자모양등을 조사하였으며 가스 분사한 분말을 불밀링에 의하여 만들어지는 수입된 분말 페이스트와 특성을 비교하였다.

2. 시료 및 실험 방법

건식 불밀링 실험에 사용한 알루미늄 호일 스크랩은 (주)대한은박지에서 발생한 것으로 순도 99.4% 이상이며 두께는 약 6.5 μm, 폭은 8 mm 이었다. 호일 스크랩을 볼 직경보다 작은 크기인 6 mm 간격으로 절단하였고 절단된 약 6.5 μm×6 mm×8 mm의 호일을 초기원료로 사용하였다. 스테인레스(SUS 304)제 용기(길이 80 mm, 내경 70 mm)속에 직경 16 mm 인 스테인레스제 볼 900 g, 원료 호일 15 g, 밀링 도중에 분말 입자의 과도한 웅집을 억제하기 위하여 스테아린산(stearic acid)을 분쇄물인 알루미늄 무게의 3%를 첨가하였다. 용기 내를 진공처리한 후, 공정가스(10% 산소를 함유한 아르곤)를 주입하여 밀 용기를 밀폐하였다. 산소를 함유한 공정 가스를 사용한 이유는 표면에너지가 높은 밀링 분말이 대기 중에 노출시 폭발하지 않도록, 분말 표면에 약간의 산화막을 형성시켜 표면에너지를 감소시키기 위함이었다. 밀링은 수평식 회전 방식을 채택하였으며, 밀용기 회전 속도는 120 rpm 으로 일정히 하였고 최대 25 시간까지 밀링을 하였다.

습식 불밀링 실험에 사용한 알루미늄 호일 스크랩은 순도 99.3% 이상이며 두께는 약 6.5, 16, 60, 120 μm 이었다. 호일 스크랩을 약 10×170 mm 의 크기로 절단하였고 절단된 호일 스크랩을 회전식 칼날 커터기에 장입하여 회전하는 칼날에 의한 전단력으로 약 4 mm 이하로 절단하여 작은 조각들을 얻었다. 길이 80 mm, 내경 70 mm 인 스테인레스 용기에 절단된 알루미늄 호일 10 g, 강구(직경 16 mm) 725 g, 미네랄스피리츠 10 g(원료무게의 100%), 올레인산 3 g(원료무게의 3%)를 장입하여 용기 회전속도 120 rpm 으로 최대 60 시간 동안 밀링을 하였다. 이때 미네랄스피리츠를 분말 무게와 같은 양을 첨가하는 이유는 밀링중 분말의 산화를 방지하고 동시에 밀링후 페이스트의 구성성분중에 용매인 미네랄스피리츠의 농도를 약 50% 정도로 조절하기 위함이다.

소정의 시간동안 밀링한 후 1 g의 분말을 채취하여 입도분석기(모델: COULTER LS130)와 수면화산 측정기를 이용하여 분말의 입도와 수면화산면적을 측정하였으며, 광학 현미경과 주사전자 현미경을 이용하여 분말의 형태를 관찰하였다. 수면화산면적은 KS규격 M-5604-1996에 의거하여 측정하였다.⁶⁾ 즉, 아세톤으로 3 회 세척하여 건조시킨 분말 0.03 g 에 이소부틸알콜 1.5 ml 을 기하여 알루미늄 분말 표면에 이소부틸알콜을 코

팅시킨 후 내부 크기가 $200 \times 500 \times 20$ mm의 알루미늄으로 된 사각 상자 속에 물을 가득 채운 후 위의 분말을 떨어뜨리고 휘저어 물위에 알루미늄 분말이 균일하게 부상하도록 한 뒤 g당 알루미늄이 덮인 면적을 측정하였다. 수면확산면적은 분말 비표면적의 약 1/2에 해당하는 값이다.

유리판 위에 지문을 찍고 그 위에 건식 밀링에 의하여 제조된 스테아린산이 코팅된 알루미늄 플레이크 분말을 볶을 이용하여 칠한 다음, 다시 깨끗한 볶으로 가볍게 쓸어 내려 지문 자국 위에 알루미늄 플레이크 분말이 불도록 허였고 지문체취용 사진을 촬영하였다. 습식밀링에 의하여 얻은 올레인산이 코팅된 알루미늄 페이스트 3.76 wt.%(0.169 g)와 신나 24.06 wt.%(1.08 g)를 혼합하여 교반한 뒤, 라커 72.18 wt.%(3.24 g)를 다시 첨가하여 초음파 교반후 측정 평가용 도료를 얻었다. 도료를 유리판위에 떨어뜨린 후 바이코더(#44, 스테인레스)를 이용하여 도포한 후 전조사켜 페인팅 후의 광택도를 휴대용 광택도측정기(Horiba IG-320 gloss checker)를 이용하여 측정하였고 페인팅 상태를 육안으로 관찰하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1. 건식 볼밀링에 의한 플레이크 분말의 제조

호일을 볼밀링할 때 밀링시간에 따른 분체화 과정을 Fig. 1에 제시하였다. $6.5 \mu\text{m} \times 6 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$ 크기로 절단된 호일들이 밀링이 되면 서로 겹쳐진 상태로 존재하면서 반복적인 볼의 낙하에 의한 충격으로 미소 단조(micro-forging)를 받는다. 5시간 후에는 소성변형이 되어 겹쳐진 호일들이 길게 연신된 상태(예: 약 $4 \sim 5 \times 10 \sim 12$ mm)로 대부분 변하였으며 이보다 더욱 충격을

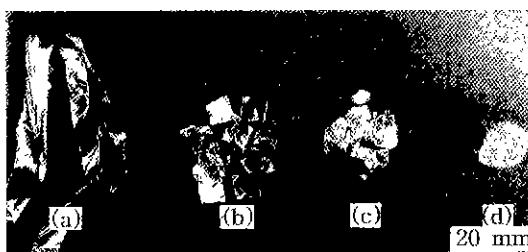


Fig. 1. Manufacturing of the aluminum flake powder from the Al foil scrap: (a) foil scrap with thickness $6.5 \mu\text{m}$, (b) cut foil $6 \times 8 \text{ mm}$, (c) foils ball milled for 5 h, (d) flake powder ball milled for 10 h.

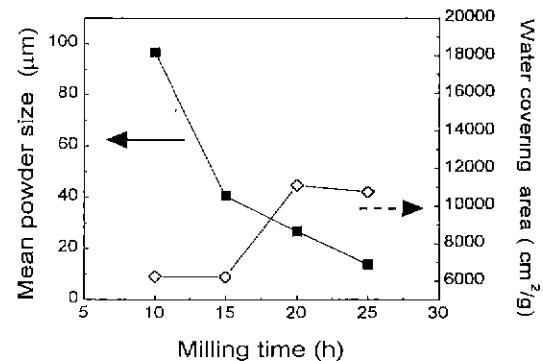


Fig. 2. Mean size and water covering area of powders with milling time.

받은 호일들은 연신이 되면서 국부적 파괴가 일어나서 쪼개지게 되어 작고 길쭉한 호일($2 \sim 3 \times 6 \sim 8 \text{ mm}$)모양이 되었다. 10 시간 동안 밀링후에는 호일들이 분체화가 되었고 길다란 플레이크의 조대한 분말이 얻어졌다.

Fig. 2의 (a), (b)는 각각 밀링 시간에 따른 플레이크 분말의 평균 입도 및 수면확산면적의 변화를 나타낸다. 밀링시간이 10 시간에서 25 시간까지 증가함에 따라 평균 입도는 $97 \mu\text{m}$ 에서 $14 \mu\text{m}$ 까지 연속적으로 감소 하며, 수면확산 면적은 평균 입도의 감소 및 플레이크화에 의하여 비표면적의 증가로 인하여 $6,238 \text{ cm}^2/\text{g}$ 에서 $10,740 \text{ cm}^2/\text{g}$ 까지 증가하는 경향을 보여 주고 있다. 특히, 15 시간 이후에 급격한 수면확산면적의 증가는 분

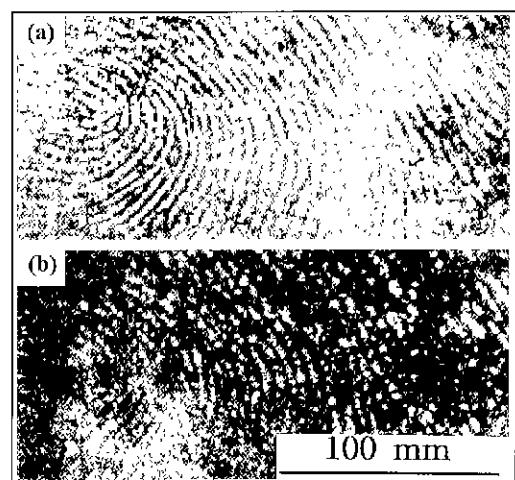


Fig. 3. Application of recycled aluminum flake powders prepared by the dry ball milling for fingerprint detection: (a) 20 h, (b) 25 h.

쇄된 입자의 플레이크화 및 분말의 미세화에 기인한다. 연성 분말을 불밀링시 입도가 밀링시간에 따라 감소하는 경우도 있는데, 본 실험에서는 공정 안정체로 첨가한 스테아린산에 의하여 분쇄된 분말의 응집이 억제되어 측정된 분말의 평균 입도가 감소하였음을 의미한다.⁷⁾

가스 분사된 분말을 건식 불밀링법으로 제조하는 알루미늄 분말은 주로 경량기포 콘크리트용, 지문 채취용, 텅크로리용 페인트 등에 이용되고 있다. 본 연구에서 알루미늄 호일을 불밀링하여 얻어진 분말들이 지문채취용에 활용 가능한 가를 검토하였다. Fig. 3은 밀링시간에 따라서 얻어진 분말들을 지문이 찍힌 유리 위에 붓으로 바른 후 새로운 붓으로 쓸어내어 얻은 지문의 형체를 활용한 사진이다. 25시간 밀링한 분말(평균 입도 14 μm)을 이용한 지문채취 결과, 미세 분말이 지문에 접착력이 약하여 붓으로 쓸어 내릴 때 쉽게 떨어져 벼려서 지문 형상을 제대로 얻을 수 없었다. 20시간 밀링된 분말(평균 입도 27 μm)들을 사용한 경우에 비교적 명료한 지문 형체가 얻어졌으며 지문 채취용으로 활용이 가능함을 알 수 있었다.

3.2. 습식 불밀링에 의한 플레이크분말 및 페이스트 제조

차량용 알루미늄 페이스트는 적절한 금속광택 및 습기 침투를 방지하여 부식 방지의 역할을 하는 알루미늄 플레이크 분말과 탄화 수소계 용매인 미네랄스피리츠, 알루미늄 플레이크 분말의 표면에 코팅되어 플레이크분말이 용매 속에 균일하게 분산되도록 난리핑(Non-

leaving)성을 부여하는 불포화지방산인 소량의 올레인산으로 구성되어 있다.⁸⁾ 본 실험에서는 알루미늄 호일 스크랩을 소량의 올레인산과 용매(미네랄스피리츠)를 첨가하여 불밀링함으로써 알루미늄 페이스트를 제조하고자 하였다.

Fig. 4는 초기 두께가 다른 호일들(6.5, 16, 60 μm) 10g을 습식 밀링하였을 때 밀링 시간에 따라 얻어진 알루미늄 페이스트 중의 분말입도 변화를 제시한 것이다. 120 μm 의 호일은 60시간 동안 밀링하여도 분체화가 이루어지지 않아, 플레이크 분말로 재활용하기에는 용이하지 않는 것으로 판명되었다. 60 μm 두께의 호일을 사용하였을 때는 15시간 밀링시 호일이 분쇄되지 않았고, 30시간 이상 분쇄후 평균 입도가 107 μm 인 조대한 분말로 되었다. 45시간 밀링후 20 μm 의 플레이크 분말로 제조되어 재활용이 가능하였다. 16 μm 두께의 호일도 15시간 밀링시 분체가 되지 않았으며 30시간 이상 분쇄후 평균 입도가 25 μm 인 미세한 분말로 되었고 밀링시간의 증가에 따라 분말의 평균 입도가 점점 감소하였다. 6.5 μm 두께의 호일은 15시간 정도로 짧은 시간동안 밀링하여도 약 20 μm 의 미세한 플레이크분말로 제조되어 재활용이 가능하였고, 밀링시간을 60시간까지 증가시키면 약 7 μm 의 미세한 플레이크 분말로 되었다. 즉, 호일 두께가 작을수록 낙하하는 불에 의한 충격으로 쉽게 소성 변형후 국부적인 파괴가 일어나 단시간에 미세한 플레이크분말로 변하였다.

본 실험결과에 의하면 불밀링에 의하여 플레이크분말로 용이하게 재활용할 수 있는 호일의 최대 두께는 약 60 μm 이었다. 따라서 스크랩중 가장 많이 발생되는 6.5

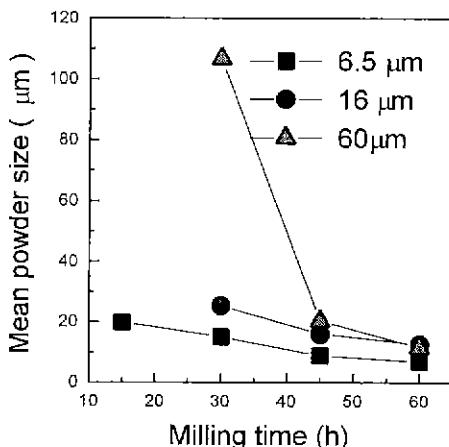


Fig. 4. Effect of initial foil thickness on the mean powder size in the ball milling of aluminum foils.

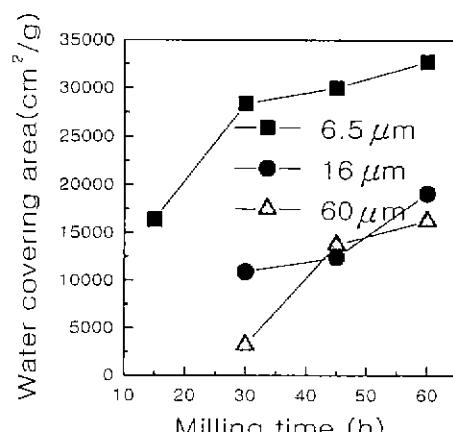


Fig. 5. Effect of initial foil thickness on the water covering area of ball milled aluminum powders

Table 1. Effect of powder characteristics on painted appearance and degree of opaque

분말의 종류	평균입도 (μm)	수면확산면적 (cm^2/g)	페인팅후 광택도	페인팅후 외관 육안 관찰
15 시간 밀링 분말	23.9	16,375	28.4	양호
30 시간 밀링 분말	15.1	28,425	27.5	양호
45 시간 밀링 분말	16.1	30,033	26.7	양호
60 시간 밀링 분말	6.9	32,750	25.8	양호
수입제 A사	16.2	4,784	26.7	양호
수입제 B사	20.5	4,926	26.0	양호
수입제 C사	22.1	10,365	25.4	양호

μm 두께의 호일을 재활용하는 것이 가장 용이하며, 생산업체의 상황에 따라서 단일 두께의 호일을 분쇄할 수도 있고 스크랩의 종류가 다양하고 소량인 경우에는 비슷한 두께 범위의 호일들을 같이 혼합하여 분쇄할 수도 있을 것이다.

Fig. 5는 각각 여러 가지 두께의 호일을 초기 원료로 사용하였을 때 밀링 시간에 따른 수면 확산면적의 변화를 나타낸 것이다. 밀링 시간의 증가에 따라 플레이크화 및 평균 입도의 감소에 기인하여 수면확산면적이 증가하였다. 6.5 μm 두께의 호일을 분쇄한 경우가 16 또는 60 μm 두께의 호일을 분쇄하여 얻은 분말보다 수면 확산면적이 매우 높아서 초기 호일 두께가 최종 플레이크분말의 특성을 좌우함을 알 수 있다.

알루미늄 박판 압연공장에서 가장 많이 발생하는 약 6.5 μm 두께의 호일을 사용하여 습식 밀링시간을 달리 하여 제조한 알루미늄 플레이크 분말의 특성 및 플레이크 분말을 함유하는 페이스트를 페인팅 원료와 배합하여 페인팅한 후 특성을 Table 1에 나타내었다.

페인팅후 광택도는 입도의 감소에 따라 유리판의 광택도를 100으로 산정했을 때 28.4에서 25.8로 점차 감소되는 것으로 나타났으며 입자들이 미세할수록 빛이 확산 반사되는 정도가 증가하기 때문이다. 한편, 페인팅 후 외관은 전체적으로 양호한 상태로 나타났다. 본 실험에서 얻은 분말의 평균 입도는 수입제품과 유사하였고, 수면확산면적은 수입제보다 매우 높은 값을 나타내어 이는 호일의 플레이크화가 매우 잘 되어 있음을 의미한다.

수입되는 차량용 알루미늄 플레이크분말 등의 분석결과, 일반적으로 평균입도는 16 μm 에서 22 μm 사이이었고 주사전자현미경으로 관찰한 결과에 의하면 그림 6-(a)와 같은 일반적인 플레이크 및 6-(b)와 같은 원판상의 플레이크의 형태를 가지고 있었다 알루미늄 호일

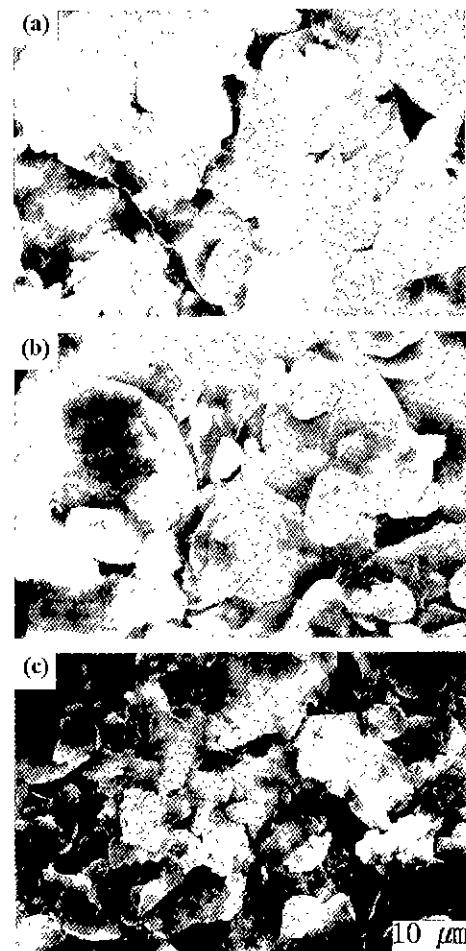


Fig. 6. SEM micrographs of various aluminum flake powders with different shape: (a) general flake powder produced by A company (b) coin-like flake powder produced by B company (c) flake powder milled for 30 h using foil scrap in this study.

스크랩을 분쇄하여 얻은 분말의 형상은 Fig. 6의 (c)와 같은 플레이크이며 (a)와 같은 수입품의 대체가 가능함을 보여주었다. 한편, Fig. 6의 (b)와 같은 플레이크의 수입재는 알루미늄 호일 스크랩의 밀링에 의하여 얻을 수가 없고 가스 분사된 분말을 단시간 밀링하여 얻을 수 있을 것으로 판단된다. 따라서, (b)와 같은 플레이크의 분말을 제외한 (a)와 같은 플레이크 분말의 제조에 알루미늄 호일 스크랩을 이용할 수가 있다. 본 연구에서 얻어진 분말을 이용하여 페인팅한 결과, 수입 제품과 비교하여 페인팅후의 색상 및 광택도에서 유사하게 나타났으며 차량 상도용 페인트의 원료로 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 결 론

1. 알루미늄 호일 스크랩의 볼밀링에 의하여 알루미늄 플레이크분말의 제조가 가능하였다. 밀링시간이 증가할수록 작은 호일들이 충상화되며 분쇄되어 미세한 플레이크분말로 변화되었다. 호일의 건식 볼밀링에 의하여 얻은 분말들은 지문채취용 등에 활용이 가능하다.
2. 습식 볼밀링에 의하여 알루미늄 플레이크 분말을 페이스트 원료로 제조 가능한 호일 스크랩의 두께는 60 μm 이하이며, 호일 두께가 작을수록 일정 시간동안 밀링후 얻어지는 분말의 입도는 작았고 수면확산면적도 증가하였다. 6.5 μm 두께의 알루미늄호일을 15 시간에서 45 시간까지 밀링하여 제조한 알루미늄 페이스트중의 알루미늄 분말 평균 입도는 24~16 μm 으로, 가스 분사된 분말을

볼밀링하여 제조한 수입 알루미늄분말의 평균 입도 16~24 μm 과 유사하였고, 수면확산면적은 16,375~32,750 cm^2/g 으로 수입분말의 값(4,784~11,467 cm^2/g)보다 높았다.

3. 밀링시간이 15 시간에서 60 시간까지 증가함에 따라 분말 평균입도가 감소하였으며, 그에 따라 광택도는 28.4에서 25.8으로 감소하였고 페인팅후 외관은 수입되는 차량용 알루미늄 페이스트와 유사하게 양호하였다.

참고문헌

1. J. D. James and B. Wilshire "Aluminum flake powders for fingerprint detection", Aluminium Industry, 11(1), 32-33 (1992).
2. Bary van Hoose : "Metallic flake pigments", Metals Handbook, 9th Edition, 7, 593-596 (1984)
3. J. D. Jame . "Production and characterisation of flake metal powders for fingerprint detection", Powder Metallurgy, 34(1), 39-43 (1991).
- 4 Mae I. Fauth : "Metal powders for fuel propellants, pyrotechnics, and explosives", Metals Handbook, 9th Edition, 7, 597-605 (1984).
- 5 Ira L. Friedman : "Milling of brittle and ductile materials". Metals Handbook, 9th Edition, 7, 56-70 (1984)
6. KS M-5604-1996.
7. G. G. Lee, H. Hashimoto and R. Watanabe : "Development of particle morphology during dry ball milling of Cu powder", Materials Transactions. JIM, 36(4) 548-554 (1995).
8. U. S. Patent 2,393,731 (1946)



洪 性 賢

- 1984년 고려대학교 금속공학과 졸업
- 1987년 한국과학기술원 재료공학석사
- 1991년 한국과학기술원 재료공학박사
- 1994년 일본금속재료연구소 책임연구원
- 1991-1997년 쌍용중양연구소 선임연구원
- 1997-현재 한국기계연구원 책임연구원



金炳淇

- 1981년 한양대학교 금속공학과 졸업
- 1987년 미국 Rutgers 공과대학 재료공학석사
- 1989년 미국 Rutgers 공과대학 재료공학박사
- 1989-1991년 미국 Nanodyne Inc. 선임연구원
- 1991년-현재 한국기계연구원 책임연구원