초고속 유성형 매체 분쇄기를 이용한 건식분쇄공정에서 Al/CNTs 복합재 제조를 위한 알루미늄분말의 분쇄거동

최희규[†] · 이재현 · 김성수* · 최경필** · 배대형** · 이승백** · 이웅**^{††}

창원대학교 메카트로닉스 융합부품소재 연구센터, *하지이엔지, **창원대학교 금속신소재공학과

Grinding Behaviour of Aluminum Powder for Al/CNTs Nano Composites Fabrication by Dry Grinding Process Using a High Speed Planetary Ball Mill

Heekyu Choi[†], Jehyun Lee, Seongsoo Kim*, Gyungpil Choi**, Daehyung Bae**,
Sungbak Lee** and Woong Lee**^{††}

Engineering Research Center(ERC) for Integrated Mechatronics Materials and Components in Changwon
National University, Changwon 641-773, Korea

*HAJI Eng. Changwon 642-971, Korea

**Department of Metallurgy & Advanced Materials Engineering in Changwon National University,
Changwon 641-773, Korea

(2012년 11월 14일 접수 : 2012년 12월 11일 최종수정 : 2012년 12월 11일 채택)

Abstract The study of grinding behavior characteristics on aluminum powders and carbon nano tubes (CNTs) has recently gained scientific interest due to their useful effect in enhancing advanced nano materials and components, which significantly improves the property of new mechatronics integrated materials and components. We performed a series of dry grinding experiments using a planetary ball mill to systematically investigate the grinding behavior during Al/CNTs nano composite fabrication. This study focused on a comparative study of the various experimental conditions at several variations of rotation speeds, grinding time and with and without CNTs. The results were monitored for the particle size distribution, median diameter, crystal structure from XRD pattern and particle morphology at a given grinding time. It was observed that pure aluminum powders agglomerated with low rotation speed and completely enhanced powder agglomeration. However, Al/CNTs composites were achieved at maximum experiment conditions (350 rpm, 60 min.) of this study by a mechanical alloy process for Al/CNTs mixed powders because the grinding behavior of Al/CNTs composite powder was affected by addition of CNTs. Indeed, the powder morphology and crystal size of the composite powders changed more by an increase of grinding time and rotation speed.

Key words Al/CNTs nano composite, planetary ball mill, mechanical alloy, particle size distribution, powder morphology.

1. 서 론

최근 다양한 산업의 발달과 함께 소재산업의 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히 다양한 장비를 제조하는데 있어서 고정밀화, 고집적화에 이어서 소재의 내구성 향상,

고기능화를 위하여 복합재료에 대한 연구도 함께 수행되고 있다.¹⁻⁴⁾ 특히 자동차의 경우 자동차 중량의 70%를 차지하는 철강재료에 필적하는 물성을 가진 알루미늄(Al)은 복합재 제조에 있어서 매우 중요한 소재이다. 더욱이 일상생활에서의 알루미늄 소재는 주방에서 사용

[†]Corresponding author

E-Mail : hkchoi99@changwon.ac.kr (H. Choi, Changwon Nat'l Univ.)

^{††}E-Mail : woonglee@changwon.ac.kr (W. Lee, Changwon Nat'l Univ.)

© Materials Research Society of Korea, All rights reserved.

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

하는 알루미늄 호일(foil)에서, 일회용 식기, 창문, 자동차, 항공기 및 우주선까지 다양한 용도로 사용되고 있다. 알루미늄의 특성으로는 철보다 중량의 1/3 정도로 가볍고, 다른 금속과 합금을 시킬 경우 뛰어난 강도를 갖는다는 것을 들 수 있다. 또한 알루미늄 표면에는 화학적으로 안정한 산화막이 존재하여 수분이나 산소 등에 의해 부식이 진행되는 것이 방지되므로, 화학적으로 안정하다.⁵⁻¹³⁾ 이와 같은 이유로, 알루미늄은 자동차와 항공기 등 다양한 산업현장의 소재로서 사용되어 왔다. 특히, 자동차의 경우 알루미늄 휠은 기존의 철제 휠에 비하여 가벼워 자체의 하중을 줄일 수 있으며, 이것은 차체 무게의 경량화를 가져와 연비 감소에 기여할 수 있는 일거양득의 효과를 가진다. 그러나 이와 같은 알루미늄은 철에 비해 인장 강도가 약 40% 정도이기 때문에 구조용재로 사용할 경우 구조용 알루미늄관이나 판재의 두께가 매우 두꺼워지고, 이는 결국 재료가 과다하게 사용되고, 이로 인해 비용 증가의 문제로 이어진다.¹⁴⁻¹⁹⁾ 이러한 문제점을 개선하기 위하여 인장 강도가 우수한 탄소 재료와 알루미늄의 접합체 및 복합재료를 제조하기 위해 다양한 형태의 연구가 활발하게 이루어지고 있다.¹⁴⁻²³⁾

하지만 알루미늄을 기반으로 제조된 복합재료를 원하는 물성으로 만들어내는 것은 매우 어렵고 많은 공정이 필요하다. 그 이유는 충전제의 균일분산이나 충전제와 원재료와의 결합에 문제가 있는 경우가 많다. 여기에 본 연구에서는 알루미늄 복합체의 충전제로 탄소나노튜브를 사용하여 신물질 개발을 위한 연구를 하고자 하였다.¹⁻⁶⁾ 21세기 들어 나노 테크놀로지(Nano Technology) 시대를 맞이하여 초미세 입자들에 관한 연구가 활발하고, 그 중심에 탄소나노튜브가 대표주자로 되어있다. 탄소 나노튜브는 1991년 일본 NEC 연구소의 이이지마(Iijima) 박사에 의해 세상에 소개되어진 이후에 우수한 기계적 특성, 전기전도도 및 열전도 특성으로 신소재 개발에 각광을 받으며 많은 연구가 행해지고 있다. 또한 최근 연구에서는 기계적 합금(MA, Mechanical Alloy)에 의한 나노 복합재료에 관한 연구들이 진행되고 있다. 또한 탄소나노튜브는 sp^2 혼성 결합을 가진 탄소로 이루어져 있고 구조적으로 안정한 형태를 가지기 때문에, 강철보다 100배 이상 강한 기계적 특성을 갖고 있다. 따라서 본 연구에서의 금속-탄소나노튜브 복합체는 sp^2 혼성결합을 가진 탄소로 이루어진 탄소나노튜브가 금속분말과 기계적 합금(MA)이 이루어지는 복합체이므로, 역학적 강도가 우수한 금속-탄소나노튜브 복합체를 형성할 수 있다. 하지만, 알루미늄과 CNT를 복합체로 형성하기에는 몇 가지 문제점이 따르는데 그 근본적인 원인은 두 물질 간의 물리·화학적 특성이 다르기 때문이다.²⁰⁾

그 첫 번째는 CNT는 CNT 분말 각각의 반데르발스(van der Waals)힘에 의한 상호 작용 때문에 분산이 쉽지 않아 알루미늄 내에 균일 분산시키기가 힘들다는 점이다. 그리고 두 번째는 탄소재료와 알루미늄 기재간의 서로 다른 표면장력이다. 탄소재료와 알루미늄의 경우 연구된 논문에 의하면 알루미늄은 표면 에너지 955 mN/m이고 탄소재료의 경우는 45.3 mN/m으로 밝혀졌다.¹⁴⁾ 즉, 알루미늄과 탄소재료의 경우, 약 20배 가량의 표면장력 차이를 나타내므로, 이는 두 물질이 잘 섞이지 않는다는 것을 말해준다. 따라서 이러한 문제들을 해결하기 위하여, 다양한 기술들이 개발되고 있으나, 대부분의 기술들이 공정이 복잡하고 장시간의 공정을 요구하므로, 생산성이 떨어지는 문제점이 있다. 따라서 본 연구에서는 금속/CNT 복합재료를 제조하는데 많이 이용되는 매체형 분쇄기(볼밀)에 의한 연구를 하고자 하였고 특히 그 중에서 분쇄포트의 자전과 공전을 통하여 더 큰 에너지를 가해 줄 수 있는 초고속 유성형 매체분쇄기(유성볼밀)을 이용하여 복합재를 제조하고자 하였다. 유성형 매체분쇄기는 포트를 포함하는 텀테이블이 회전함과 동시에 포트가 스스로 회전을 하는, 즉, 분쇄포트 자체가 자전과 공전을 동시에 하는 유성(流星)형태의 움직임을 가지는 분쇄기로서, 통상의 볼밀과 교반형 볼밀에 비해서 매우 큰 에너지가 분쇄매체에 전달된다. 따라서 분쇄포트 내에서의 분쇄매체의 움직임이 기존의 분쇄기에 비해 매우 빠르고 힘이 크게 작용하여 재료에 전달되는 힘이 매우 크다. 즉, 회전으로 인한 분쇄매체 상호간의 충돌, 분쇄매체와 분쇄포트 내벽의 충돌 등에 의해 빠른 분쇄가 가능하므로, 금속복합재료를 제조하는데 있어서 유성형 매체 분쇄기를 사용하는 것이 바람직하다.

그리고, 본 연구에서는 분쇄(밀링)시간이 증가할수록 입자들의 크기나 형상, 그리고 결정구조가 어떻게 변해가는가를 파악하는, 즉 입자들의 분쇄거동에 착목하여 연구를 진행하였다. 이는 분쇄공정이 단지 입자경을 작게 만드는 단위조작뿐만 아니라 복합재를 제조하기 위한 기계적 합금(MA)공정이 함께 이루어진다는 것을 배경으로 연구하였으며, 특히 분말야금에서 기계적 합금(MA) 공정을 통한 입자들의 거동을 관찰하는데 초점을 맞추어, 궁극적으로 기계적인 특성이 향상되는 복합재를 만드는데 있어, 초기 입자들의 분쇄거동이 어떻게 영향을 미칠 것인가를 관찰하고자 하였다.²⁴⁻²⁶⁾

2. 실험 방법

분쇄실험장치로는 하지이엔지(HAJI Eng. Korea)에서 제작한 유성형 매체 분쇄기(Planetary Ball Mill)가 사용되었다. Fig. 1에 실험실규모 유성형 매체 분쇄기의 사진과

Fig. 1. Photography and schematic diagram of a planetary ball mill experimental used.

개략도를 도해하여 제시한다. 분쇄를 위한 포트는 직경 40 mm, 체적 45 ml의 크기로 되어 있으며 재질은 오염을 방지하기 위해 내마모성 지르코니아(zirconia)를 사용하였다. 분쇄매체역시 내마모성 지르코니아를 사용하였으며, 크기는 직경 10 mm의 볼을 사용하였다.

샘플의 양은 매체와 샘플의 비율, 즉, BPR(Ball Powder Ratio)을 10:1로 하여 볼의 무게는 56 g, 샘플의 무게는 5.6 g으로 하였다. CNT의 양은 샘플의 2 wt%로 하여 0.112 g을 투입하였다. 분쇄기의 회전속도는 50, 150, 250, 350 rpm으로 변화를 주었고, 분쇄(밀링)시간은 최초 7.5

분에서 15분, 30분, 60분까지 진행을 하였다. 전체적인 실험은 회분식으로 진행하여 샘플을 회수하고 각각의 샘플의 분석을 실시하였다.²⁴⁻²⁶⁾ Table 1에 본 실험의 실험 조건을 정리하여 나타내었다.

또한 기계적 합금(MA)이 이루어진 이후의 샘플들의 특성을 파악하기 위하여 입도분포측정, X선 회절분석, 주사전자현미경(SEM)을 통한 입자형상 분석을 하였으며, 입도분포측정은 레이저 회절산란의 원리를 이용하는 영국 Malvern 사의 ‘Master Sizer 2000’을 사용하였고, X선 회절은 독일 Philips사제(Model: X’pert MPD3040), SEM은 일본의 JEOL사제(Model: JMS5610)를 사용하였다.

본 연구에 사용된 시료로는 산업현장에서 고강도 경량 합금재료로 다양하게 사용되는 알루미늄 분말((주)마이크로메탈, 순도 99.9 %, 중위경 45 μm)을 사용하였다. 그리고 Al/CNTs 복합재를 제조하기 위한 탄소나노튜브(CNTs)는 다층벽 탄소나노튜브(Multi Wall CNTs, Carbon Nano-materials Technology Co. Ltd.)를 사용하고 직경 약 5 nm, 길이 약 20 μm 인 제품을 사용하였다. Fig. 2에 실험에 사용된 알루미늄과 카본나노튜브의 전자현미경 사진을 보인다.

Table 1. Summary of experimental conditions.

Item	Experimental condition
Rotation speed (n)	50, 150, 250, 350 (rpm)
Grinding time (t)	7.5, 15, 30, 60 (min)
Filling ratio (J)	0.70 (-)
Size of grinding media (d_B)	1.0 (mm)
BPR (Ball Powder Ratio)	10:1 (-) (Al:5.6 g)
CNTs concentration (C_s)	0.2 (wt%) (CNT:0.112 g)
Temperature	room temperature

Fig. 2. SEM micrographs showing the shape of starting materials employed in the current study: (a) the aluminum powder and (b) the MWCNTs.

3. 결과 및 고찰

Fig. 3에는 순수한 알루미늄을 시료로 사용하여 각종 실험조건에 따른 입도분포를 나타내었다. 본 실험조건에서 저 회전영역인 50 rpm, 150 rpm의 회전속도에서는 분쇄(밀링)시간이 증가할수록 입자들이 조금씩 작아지는 것을 확인 할 수 있었으며, 즉 입도분포의 주된 봉우리가 좁아지면서 원료 샘플에 비해 크기가 작은 왼쪽으로 조금씩 이동하는 현상을 볼 수 있었다. 하지만 회전속도가 증가할수록(250 rpm, 350 rpm) 입자들의 응집이 나타면서 주된 봉우리의 폭이 서서히 넓어지면서, 본 실험조건에서 가장 빠른 회전영역인 350 rpm의 경우 분쇄(밀링)시간 60분이 경과한 후 분쇄입자들의 전형적인 입도분포를 보이면서, 입자크기가 큰 영역에서 나타나는 봉우리의 경우 원료입자보다 더 큰 영역으로 이동하였다. 이는 분쇄(밀링)시간이 길어지면서 입자들이 응집되어 원래의 원료입자보다 더 큰 입자가 생성되었음을 알 수 있다. 따라서 본 연구는 입자의 크기를 작게 하는 분쇄의 목적 뿐만이 아니라 분말야금 공정에서 기계적 합금(MA)을 통해 복합재를 만들기 위해 유성불밀을 통한 실험을 행한 것이므로, 본 연구의 목적에 맞는 결과가 나타나는 과정이라고 생각 할 수 있다.²⁴⁻³¹⁾

Fig. 4에는 앞서 Fig. 3과는 달리 알루미늄 분말에 CNT 분말을 첨가하여 복합재를 만들기 위한 연구를 행한 것

에 대한 입도분포의 변화를 보인다. 저 회전 영역인 50 rpm의 조건에서 입자들이 전반적으로 약간씩 뭉치는 경향이 나타나 입도분포가 입자들이 큰 쪽으로 이동하는 결과를 얻었으나, 분쇄(밀링)시간이 길어질수록 점점 더 작은 크기의 입자들이 생성이 되는 일반적인 분쇄현상과 비슷한 결과를 나타내었다. 여기서 주목해야 할 것은 본 연구에서는 금속과 카본나노튜브의 두 가지 종류가 다른 물질을 복합재로 만드는 것을 연구의 목표로 삼고 있었으나, 회전속도가 빨라지면서 분쇄 본연의 기능인 입자크기가 작아지는 결과와 입자들이 서로 응집되면서 복합입자가 생성되는 두 가지 동시의 결과가 나타나게 되었다. 이는 CNT 입자들이 분쇄조제의 역할을 하면서 서로 응집이 되는 것을 막는 효과를 내기도 하면서, 한편으로는 유성불밀의 강력한 에너지가 복합입자를 생성하게 되는 결과를 보이기도 하는 것이다.²⁴⁻³¹⁾

Fig. 5에는 각 실험조건에 따라 얻어진 입도분포 측정 결과부터 얻어진 중위경(x_{50})의 변화를 도시하였다. 입도분포는 그 결과를 통해 분쇄가 되어가는 경시변화를 알 수 있다면, 중위경의 변화를 통해서도 보다 정량적인 분쇄 거동을 파악 할 수 있다.

본 실험에서는 각각의 실험조건에서 얻어진 중위경을 변화를 살펴보면 회전속도에 따라서 입자의 크기가 급격히 커지거나 작아지는 결과는 나타나지 않았다. 하지만, Fig. 5(a)에서 알 수 있듯이, 저 회전영역인 50 rpm

Fig. 3. Changes in the frequency particle size distributions of pure Al. (a) 50 rpm, (b) 150 rpm, (c) 250 rpm and (d) 350 rpm

Fig. 4. Changes in the frequency particle size distributions of Al/CNTs (2 wt%) composite powder. (a) 50 rpm, (b) 150 rpm, (c) 250 rpm and (d) 350 rpm.

Fig. 5. The median diameter(x_{50}) of pure aluminum and Al/CNTs composite powder for various rotation speed at different grinding time; (a) 50 rpm, (b) 150 rpm, (c) 250 rpm and (d) 350 rpm.

에서는 분쇄(밀링)시간이 길어질수록 입자크기가 크게 변화하는 것을 알 수 있으나, 그 외의 회전속도에서는(Fig. 5(b)-(d)) 입자크기가 크게 변화하지 않았다. 그 이유는 본 실험은 분쇄 본연의 기능인 입자크기를 작게 하기 위한 실험 조건의 최적화를 행한 것이 아니라, 금속/CNT 복합재를 만들기 위해 실험 조건을 선정한 것으로서, 50 rpm의 경우 입자크기가 작아지는 결과는 얻어지지 않는 것이었다. 그리고 CNT가 첨가된 경우와 되지 않은 경우를 살펴보면, 역시 저 회전영역(50 rpm)에서는 입자들의 뭉침이 확연히 구별되었으나, 그 외의 실험 조건인 경우 차이를 구별하기가 어려웠다. 이는 저 회전영역에서 복합재를 만드는 경우와 고 회전 영역에서 복합재를 만드는 경우에 입자의 거동에 다른 특성을 관찰해서 만드는 방법이 달라져야 한다는 것을 나타내고 있으며, 최종 제품이 목적하는 바에 따라 실험 조건을 달리해야 한다는 것을 보여주고 있다. 일반적으로는 분쇄(밀링)시간이 증가 할수록 최적의 조건을 경과하면, 재 응집이 일어나는 역분쇄 현상이 나타난다. 본 연구에서는 이러한 현상을 효과적으로 적용하여 응집을 통한 복합재를 만들고자 하였다. 다만, 앞서 설명한 것처럼 CNT를 첨가

하였을 경우 CNT 자체가 분쇄조제의 역할을 하여 응집을 억제하고, 역 분쇄를 막을 수 있기 때문에, 복합재를 만드는, 즉 응집을 일으켜야 하는 또 하나의 분쇄의 공정의 목적에 어려움이 따를 수 있다. 따라서 복합재를 만들기 위해서는 보다 더 응집이 잘 되어 두 가지 다른 성질의 재료를 복합재로 만드는 것에 주목하면서 동시에 서로의 응집을 막게 되는 것을 어떻게 제어 할 수 있는 가에 주목하였다. 여기서, 분쇄 본연의 임무인 입자크기를 작게 하기 위해서 사용되는 분쇄조제라는 것은 조제분자가 고체에 흡착하여 표면에너지를 감소시켜 균열의 진행을 촉진하는 것인데, 복합재를 만드는 것은 서로 간에 응집을 잘 일으켜 기계화학적(mechano chemistry)으로 합금을 만드는 것이므로 그 상호간의 작용 메커니즘을 규명하는 것도 매우 중요한 과제가 될 것이다.

Fig. 6과 7에는 복합재 제조 시의 입자의 변화거동을 관찰하기 위하여 순수한 알루미늄만으로 기계적 합금(MA)을 한 결과와 CNT를 첨가하여 복합재를 제조하기 위한 결과의 SEM 사진을 나타내었다. 앞서 입도분포 측정결과에서 알 수 있듯이, 알루미늄의 분쇄거동을 파악한 결과 순수한 알루미늄의 경우 낮은 회전속도(50, 150 rpm)

Fig. 6. Series of SEM micrographs showing the morphological evolution of the pure aluminum powders with the progress of planetary ball milling; (a) 50 rpm, (b) 150 rpm, (c) 250 rpm and (d) 350 rpm.

Fig. 7. Series of SEM micrographs showing the morphological evolution of the Al/CNTs (2 wt%) mixture powders with the progress of planetary ball milling; (a) 50 rpm, (b) 150 rpm, (c) 250 rpm and (d) 350 rpm.

에서부터 서서히 입자의 응집이 일어나 입자들이 뭉쳐지는 거동이 관찰되었고(Fig. 6(a)-(b)), 높은 회전속도(250, 350 rpm)에서는 분쇄공정에서 기계적 합금(MA)의 효과로 인하여 완벽한 응집체가 생성되었다(Fig. 6(c)-(d)). 하지만 CNT를 첨가한 경우에는 Fig. 7(a)-(c)에서 볼 수 있듯이 저 회전 영역에서는 큰 변화를 보이지 않았고, 본 실험 조건 중 최대의 조건인 350 rpm, 60분의 조건에서 응집이 시작되었다(Fig. 7(d)). 또한, 입도분포의 경시변화를 관찰한 결과 입도분포의 변화는 분쇄(밀링)시간이 길수록, 회전속도가 빠를수록 응집이 잘 일어나는 것을 알 수 있었으며, 이는 일반적인 분쇄공정의 현상과 비슷하였다. 하지만, 본 연구에서는 Al/CNTs의 복합재를 만드는 것을 목표로 하고 있어, CNT 분말이 복합재의 한 쪽 원료로서 뿐만이 아니라 분쇄의 진행을 도와주는, 즉 복합재를 만들기 위해 응집이 되는 것을 막아주는 분쇄조제의 역할을 하는 것에 대한 고찰이 필요할 것이다. 따라서 금속과 CNT와 같은 두 가지 다른 성분의 복합재를 만들기 위해서는 전체 공정 중에 복합재 제조 공정에 주목하는 것과 더불어 입자 개개의 거동에 관심을 두는 것도 매우 중요한 연구인 것이다.²⁴⁻³¹⁾

Fig. 8에 순수한 알루미늄((a), (b))과 Al/CNTs 복합재((c), (d))의 분말 XRD 패턴을 보인다. 거의 모든 측정 결과에서 XRD 피크(peak)는 그다지 큰 차이를 나타내지는 않았으나, 두 가지 경우 모두 저회전 영역((a), (c))보다 고회전 영역((b), (d))의 경우 피크의 intensity가 작아지는 결과가 나타났고, 분쇄(밀링)시간이 길어질수록 아주 조금씩 낮아지는 결과를 알 수 있었다. 이는 본 실험에서의 수행된 실험조건에서는 샘플의 비정질화는 가장 극한 조건인 300 rpm, 60분에서 비정질화가 약간 진행이 되었고, 그 외에는 거의 나타나지 않은 결과를 확인할 수 있었다. 이전의 Al/CNTs 복합재 제조를 위한 볼밀의 연구에서는 72시간까지 장시간 분쇄(밀링)를 하는 경우 비정질화가 나타나기 시작하였으나, 유성볼밀을 사용한 본 연구에서는 일반적인 볼밀에 비해 고 에너지가 투입되기는 하였지만, 비정질화가 진행되지는 않는 것으로 보여 비정질화에 관해서는 투입되는 에너지량과 함께, 분쇄(밀링)시간이 중요하다는 것을 알 수 있었다.²⁸⁾

Table 2에는 X-ray 회절패턴의 결과를 이용하여 Scherrer 식 (1) 을 적용하여 계산된 결정의 크기를 나타내었다.

Fig. 8. XRD spectra of (a) 50 rpm, (b) 350 rpm on the pure aluminum and (c) 50 rpm, (d) 350 rpm on the Al/CNTs composites samples with planetary ball milling for grinding time.

Table 2. The grain size of pure aluminum and al/CNTs composite powder(experimental condition; rotation speed-350rpm).

Sample	pure Aluminum powder	Al/CNTs composit powder
t(min)	crystal size (nm)	crystal size (nm)
0	1.50	1.50
7.5	1.23	1.14
15	1.18	0.66
30	0.79	0.49
60	0.64	0.41

$$d = 0.9 \frac{\lambda}{B \cdot \cos \theta} \quad (1)$$

여기서 d 는 결정의 크기, λ 는 X-radiation의 파장, θ 는 Bragg angle, B 는 peak intensity의 높이 1/2 지점의 폭 (full width of half maximum, FWHM)이며, 단위는 라디안으로 산출 시 B 에 $2\pi/360$ 을 곱하여 계산하였다.

앞서 Fig. 5에서는 입도분포 측정기로 측정한 중위경의 결과를 나타내었으나, 그 결과 분쇄(밀링)시간이 증가하여도 입자의 중위경이 크게 변화하지 않거나, 혹은 응집으로 인하여 그 입자크기가 더욱 커지는 현상을 볼 수 있었다. 하지만, Scherrer 식을 이용하여 결정입자크기를 계산한 결과 분쇄(밀링)시간이 증가할수록 지속적으로 결정입자의 크기가 작아지는 것을 알 수 있었다.^{27,28)} 이는 원료의 결정입자를 계산한데에서도 알 수 있듯이 입도

측정장치에 의해 측정된 입자경과, X선 회절 분석에 의한 계산된 결정입자의 크기는 계산된 입자크기가 매우 작게 나타는 경향이 있다. 이는 근본적으로 측정 방법에 따라 차이가 나는 것을 알 수 있고, 입자 자체의 크기와 결정립의 크기는 물리적 의미가 다른 것을 말할 수 있다.

4. 결 론

알루미늄(Al)과 카본나노튜브(CNT)를 혼합한 Al/CNTs 복합재를 제조하기 위하여 초고속 유전형 매체분쇄기를 이용하여 실험을 행하였다. 복합재 제조 시의 입자의 변화거동을 관찰하기 위하여 순수한 알루미늄과 CNT를 첨가하여 혼합된 알루미늄의 분쇄거동을 파악한 결과 순수한 알루미늄의 경우 낮은 회전속도(50, 150 rpm)에서부터 서서히 입자의 응집이 일어나 복합재로서의 거동이 관찰되었고, 높은 회전속도(250, 350 rpm)에서는 분쇄공정에서 기계적 합금(MA)의 효과로 인하여 완벽한 응집체가 생성되었다.

CNT를 첨가한 경우에는 본 실험 조건 중 최대의 조건인 350 rpm, 60분의 조건에서 응집이 시작되었고, 이는 CNT입자가 마치 분쇄조제의 역할을 한 것 처럼 되어 복합입자 제조 시 최적의 조건을 조정하는 것이 매우 중요하다는 것을 확인하였다.

또한 입도분포와 XRD 패턴의 경시변화를 관찰한 결과 입도분포의 변화는 분쇄(밀링)시간이 길수록, 회전속도가 빠를수록 응집이 잘 일어나는 것을 알 수 있었으며, XRD패턴은 어떤 실험 조건에도 크게 변화 하는 것을 볼 수 없었으나, 본 실험 범위 내에서 가장 에너지 투입이 많은 조건인 350 rpm 60분간 분쇄한 조건에서 약간의 비정질화가 나타났다. 하지만, scherrer 식을 이용하여 결정의 크기를 계산한 결과 분쇄(밀링)시간이 길어질수록 결정의 입자의 크기가 작아지는 것을 알 수 있었다. 따라서 AI/CNTs 복합재를 제조하기 위해서 원료 물질이 되는 입자들의 분쇄거동을 파악한 결과 각각의 실험 조건에 따라 다른 결과를 얻을 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 2011년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2011-0030801).

참 고 문 헌

1. L. Wang, H. Choi, J. -M. Myoung and W. Lee, Carbon, **47**, 3427 (2009).
2. A. Esawi and K. Morsi, Compos. Appl. Sci. Manuf., **38**, 646 (2007).
3. A. M. K. Esawi, K. Morsi, A. Sayed, M. Taher and S. Lanka, Compos. Sci. Tech., **70**, 2237 (2010).
4. K. W. Lee, G. S. Kim, D. G. Kim and Y. D. Kim, J. Kor. Powd. Metal. Inst., **9**, 329 (2002) (in Korean).
5. T. Laha, A. Agarwal, T. McKechnie and S. Seal, Mater. Sci. Eng. A, **381**, 249 (2004).
6. K. T. Lau and D. Hui, Carbon, **40**, 1605 (2002).
7. D. W. Lee, B. K. Kim, G. G. Lee and G. H. Ha, J. Kor. Powd. Metal. Inst., **3**, 159 (1996) (in Korean).
8. A. M. K. Esawi, K. Morsi, A. Sayed, M. Taher and S. Lanka, Compos. Appl. Sci. Manuf., **42**, 234 (2011).
9. E. Y. Yoon, D. J. Lee, T. S. Kim and H. S. Kim, J. Kor. Powd. Metal. Inst., **19**, 204 (2012) (in Korean).
10. W. K. Jang and K. S. Shin, J. Kor. Powd. Metal. Inst., **12**, 208 (2005) (in Korean).
11. S. H. Joo and H. S. Kim, Trans. Mater. Process., **19**(7), 423 (2010) (in Korean).
12. S. Wang, R. Liang, B. Wang and C. Zhang, Chem. Phys. Lett., **457**, 371 (2008).
13. J. H. Jang and K. S. Han, J. Compos. Mater., **41**, 1431 (2007).
14. T. Kuzumaki, K. Miyazawa, H. Ichinose and K. Ito, J. Mater. Res., **13**, 2445 (1998).
15. J. H. Lee, I. Y. Kim, G. S. Lee, S. H. Baik, J. I. Youn, Y. J. Kim and Y. Z. Lee, J. KSTLE, **24**, 269 (2008) (in Korean).
16. L. Ci, Z. Ryu Z, N. Y. Jin-Phillipp and M. Rühle, Acta Mater., **54**, 5367 (2006).
17. C. B. Mo, B. K. Lim, Y. J. Jeong and S. H. Hong, J. KSPE, **24**(8), 7 (2007) (in Korean).
18. W. Lee, S. Jang, M. J. Kim and J. M. Myoung, Nanotechnology, **19**, 285701 (2008).
19. M. Estili and A. Kawasaki, Scr. Mater., **58**, 906 (2008).
20. S. Nuriel, L. Liu, A. H. Barber and, H. D. Wagner, Chem. Phys. Lett., **404**, 263 (2005).
21. C. F. Deng, D. Z. Wang, X. X. Zhang and A. B. Li, Mater. Sci. Eng. A, **444**, 138(2007).
22. S. -M. Zhou, X. -B. Zhang, Z. -P. Ding, C. -Y. Min, G. -L. Xu and W. -M. Zhu, Compos. Appl. Sci. Manuf., **38**, 301 (2007).
23. C. L. Xu, B. Q. Wei, R. Z. Ma, J. Liang, X. K. Ma and D. H. Wu, Carbon, **37**, 855 (1999).
24. H. Choi, S. Kim and J. Y. Hwang, J. Miner. Soc. Korean, **20**, 135 (2007) (in Korean).
25. H. Choi and L. Wang, Kor. J. Mater. Res., **17**, 532 (2007) (in Korean).
26. H. Choi, W. Lee, S. Kim and H. Chung, Int. J. Appl. Ceram. Technol., **8**, 1147 (2011) .
27. H. Masuda, K. Higashitani and H. Yoshida, Powder Technology Handbook, 3rd ed., p. 213, Taylor & Francis, London, UK (2006).
28. J. S. Lee and H. S. Lee, J. Korean Ind. Eng. Chem., **18**, 41 (2007) (in Korean).
29. D. W. Fuerstenau, KONA, **13**, 5 (1995).
30. H. K. Choi, W. Lee, D. U. Kim, S. Kumar, J. H. Ha, S. S. Kim and J. G. Lee, Kor. J. Chem. Eng., **26**, 300 (2009).
31. H. Choi, W. Lee and S. Kim, Adv. Powder Tech., **20**, 350 (2009).