

동시 경화 장섬유 복합재료-알루미늄 혼성 구조물의 접착 특성 연구

이성우* · 장승환*†

A Study on Adhesion Characteristics of Co-cured Long Fiber Prepreg Sheet-Aluminum Hybrid Structures

Sung-Woo Lee*, Seung-Hwan Chang*†

ABSTRACT: Long Fiber Prepreg Sheet (LFPS) has the advantages of excellent production efficiency and formability for complex shapes compared to conventional continuous fiber reinforced composites. When fibrous composites are used with different materials, joining method is important because strength of the joining part determines the strength of the hybrid structure. In this study, the adhesive joint strengths of co-cured LFPS and aluminum were evaluated under various surface treatment conditions and environmental conditions (temperature and moisture conditions). Mechanical abrasion and plasma exposure were used for the surface treatment. The adhesive joints experienced various surface treatments were tested by using single lap joint specimens. Adhesive strengths under various conditions were compared and the most appropriate condition was determined.

초 록: 장섬유 복합재료(Long Fiber Prepreg Sheet; LFPS)는 기존 연속섬유로 구성된 섬유 강화 복합재료에 비해 우수한 생산 효율과 성형성을 가지고 있다. 섬유 강화 복합재료가 타 재료와 혼성으로 사용이 되는 경우 이종 재료의 체결을 위해 접착 방법을 사용하게 되며, 접착부의 강도는 혼성 구조물의 강도를 결정하기 때문에 복합재료 접합부의 설계는 중요하다. 본 연구에서는 동시에 경화된 LFPS와 알루미늄의 접합부를 다양한 표면처리 조건과 온도 및 수분 환경조건에 따른 접착 특성을 평가하였다. 표면처리 기법으로는 기계적인 방법인 연마와 플라즈마 표면처리를 대상으로 하였다. 다양한 표면처리가 적용된 접착 조인트는 단면 겹치기 접착 조인트를 사용하여 실험하였다. 여러 조건들에서 접착 강도가 평가되었고 가장 적절한 조건이 도출되었다.

Key Words: Long Fiber Prepreg Sheet(LFPS), 동시 경화 접착(Co-cured adhesive), 표면 처리(Surface treatment), 환경 조건(Environmental conditions)

1. 서 론

섬유 강화 복합재료는 높은 강도, 강성을 가지면서 동시에 경량화 효과를 얻을 수 있기 때문에 다양한 산업 분야에서 복합재료가 적용되고 있으며 여러 방향으로 연구가 이루어지고 있다. 기존의 다양한 금속 구조물들이 섬유 강화 복합재료로 대체되고 있으며, 특히 경량화와 안전성이 요

구되는 분야에서 높은 비율로 복합재료가 사용되고 있다. 이미 다양한 연구가 진행된 재료인 일방향 섬유 강화 복합재료는 고강성, 고강도에 의해 구조물의 성능을 개선하며 경량화를 통한 에너지 효율성을 증가시키지만 이방성 특성을 가지고 있어 설계가 복잡하고 대량생산 공정에 적합하지 않은 단점이 있다. 따라서 성형 시간이 짧고, 연속공정으로 제품을 성형할 수 있는 재료에 대한 요구에 부응하

Received 30 November 2017, received in revised form 13 February 2018, accepted 14 February 2018

*School of Mechanical Engineering, Chung-Ang University

*†School of Mechanical Engineering, Chung-Ang University, Corresponding author (E-mail: phigs4@cau.ac.kr)

기 위한 재료로서 장섬유 복합재료(Long Fiber Prepreg Sheet; LFPS)가 하나의 대안일 수 있다. LFPS는 경화시간이 짧은 수지로 구성된 일 방향 탄소섬유 프리프레그를 일정한 폭과 길이로 절단하고 무작위 분포(Random distribution)시켜 준 등방성 물성을 갖도록 제작한다. 단 섬유와 연속섬유의 중간 길이를 갖는 LFPS는 적당한 기계적인 물성들과 10분 안에 경화가 이루어지는 등 대량 생산에 유리하다. 또한, 기존 오토클레이브 성형 법과 같은 복잡한 성형 방식이 아닌 단순한 핫 프레싱(Hot pressing) 성형법을 이용하며 비교적 짧은 시간 내에 복잡한 구조물 성형이 가능하다[1-3].

복합재료로 이루어진 구조물의 효율성은 구조물 자체보다 이종 재료 간의 접합부의 건전성에 의해서 결정되는 경우가 대부분이기 때문에 복합재료 접합부의 설계는 매우 중요하다. 복합재료의 접합 방법은 기계적인 체결과 접착제에 의한 접착으로 분류된다. 접착제에 의한 접착법은 부가적인 접착제를 도포하는 방식과 성형과정에서 복합재료 내 잉여 수지에 의해 접착되는 동시 경화 접착법으로 분류되는데, 생산 과정의 단순화를 고려하여 본 연구에서는 동시 경화 접착법을 고려하였다[4].

이종 재료 간의 접착 성능은 피접합물 표면의 상태에 영향을 많이 받기 때문에 표면처리 방법에 따른 이종 재료 간 접착 성능 연구는 중요하다. 그리고 동시 경화 접착법은 금속과 복합재료를 동시 성형하므로 금속뿐만 아니라 복합재료 표면처리 또한 중요하다. 표면처리 기법으로는 기계적인 표면처리인 연마재를 이용한 연마와 입자 블라스팅(Grit blasting) 등이 있고, 화학적인 표면처리로서 산을 이용한 표면처리가 있으며, 물리적인 처리 방법으로 플라즈마 표면처리가 있다. 기계적인 표면처리는 가장 기본적인 표면처리이며, 약한 경계층과 오염원을 제거할 수 있고 표면조도를 조절하여 표면 형태 변화에 따른 접착 성능을 개선할 수 있다. 화학적인 표면처리는 오염원 제거 및 에칭(Etching) 효과가 있고, 플라즈마 처리는 오염원 제거 및 에칭 효과뿐만 아니라 새로운 기능을 생성시킴으로써 표면 에너지를 증가시켜 현저히 낮은 접촉각이 형성되어 접촉 성능을 향상시킨다[5,6].

이러한 접착 방식은 환경 조건(사용 온도 및 수분 노출 등)들에 의한 영향이 크므로 환경에 따른 접착강도에 대한 실험 연구가 필요하다. 혼성 구조물은 여름철 고온과 겨울철 저온에서의 온도 변화로 야기되는 물성 저하 및 잔류 열응력에 관한 접착 계면의 불안정성을 극복해야 한다. 또한, 접착부의 수분 노출은 가소성과 부풀림 현상에 의해 접착강도 저하에 큰 영향을 미친다. 수분 침입은 피접합물과 접착제 사이와 접착제를 통해서 가능하며 피접합물과 접착제 사이의 틈이 발생할 경우 부식이 일어날 수 있다고 알려져 있다[7,8].

본 연구에서는 이종 재료 간의 접착 성능을 향상시키기 위해 가장 기본적인 표면 처리로서 연마 표면 처리와 복잡

한 형상에도 편리한 플라즈마 표면처리를 사용하였으며, 단일 표면처리 조건에 의한 접착강도와 두 가지 표면처리 기법을 동시에 접착 표면에 적용한 혼성 표면처리 기법에 의한 접착강도를 비교하였다. 상기 실험에서 얻은 가장 높은 접착 강도를 가진 표면처리 조건을 도출하여 온도와 수분 노출 실험을 통해 환경 조건에 따른 이종 재료 간의 접착 특성을 평가하였다.

2. 실험

2.1 재료 및 성형 과정

본 연구에서 사용한 재료는 SK Chemicals(Korea)에서 개발한 장섬유 복합재료이다. 해당 재료는 평면 내에서 준 등방성 재료이며, 기본적인 물성들은 Table 1에 표기하였다. LFPS의 장 섬유는 일 방향 탄소섬유를 8 mm × 25 mm(폭 × 길이) 크기로 절단하여 하나의 유닛(Unit)을 구성하며, 수지는 속 경화 수지(Rapid curing resin)로 구성되어 있다. LFPS 성형 공법인 핫 프레싱을 이용하기 위해 Fig. 1에 나타난 바와 같이 이종 재료 간의 동시 경화를 위한 금형을 설계하였다. 금형은 금형과 접착 조인트 시편의 탈형 편리를 위해 조립 및 분해가 가능하게 설계되었다.

LFPS-알루미늄 접착 조인트 시편 성형과정은 다음과 같다. 두께가 약 2 mm인 LFPS를 25 mm × 110 mm의 직사각형 형상으로 자르고 이형제로 코팅된 금형을 1시간 동안 예열을 시킨다. 그런 다음 25 mm × 110 mm × 2 mm의 알루미늄 빔과 채단된 두 장의 LFPS를 하부 금형에 장입한 후 상부 금형을 체결한다. 조립된 금형을 LFPS의 성형 조건인 온

Table 1. Material properties

Material properties	LFPS	Aluminum (6061-T6)	Epoxy resin
Tensile strength (MPa)	228	310	85
Tensile modulus (GPa)	38	68.9	3.1
Density (kg/m ³)	1,620	2,700	1,200
Poisson's ratio	0.23	0.33	0.3
CTE (μm/m°C)	-	23.6	60

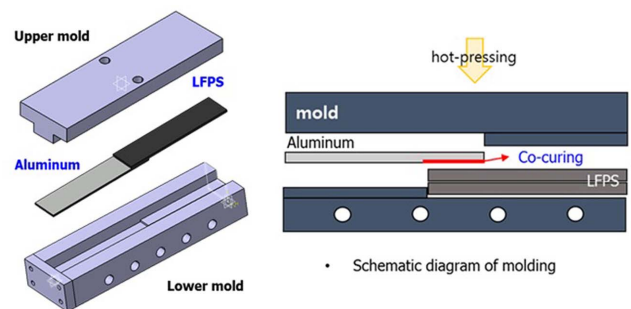


Fig. 1. Mold for LFPS-aluminum single lap joint specimens

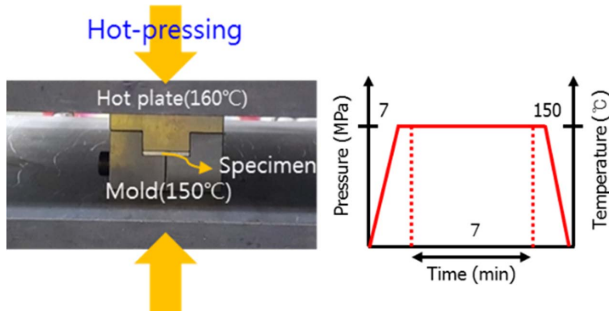


Fig. 2. Forming condition

도 150°C, 압력 7 MPa에 7분 동안 온도와 압력을 가한다(Fig. 2). 열 압착 과정 이후 조립된 금형은 상온의 물에 의해 2분 동안 급속 냉각된다. 마지막으로 시편 손상을 방지하기 위해서 압출 핀(Ejector pin)을 이용하여 금형으로부터 시편을 탈형한다.

2.2 접착부의 표면처리

표면처리로는 연마재를 이용한 연마 표면처리 기법과 플라즈마 표면처리 기법을 이용했다. 연마재를 이용한 표면처리에서는 연마재의 거칠기(#60, #220, #400)를 변화시켜 표면 거칠기에 따른 접착 성능 변화 경향을 분석하였다. Fig. 3에 나타난 그림과 같이 알루미늄 표면에 사포를 이용하여 0°, 90°, ±45° 각도로 각 10번씩 일정하게 연마시켰으며, 연마 후 표면에 붙어 있는 알루미늄 입자들을 제거하기 위해 아세톤으로 세척하였다. 그리고 사포의 종류에 따른 알루미늄의 표면 거칠기는 표면 조도계를 이용하여 연마재의 종류별로 10번씩 측정하여 평균값(Ra)을 얻었다(Table 2).

플라즈마 표면처리를 위해 대기압에서 공기 기반 플라즈마(Air plasma)를 이용하였다. 접착 성능을 극대화하기 위해 출력 값은 가장 높은 18 W로 설정하였고, LFPS 표면과 알루미늄 표면 양쪽에 노출시켰다. Fig. 4의 그림과 같이 플라즈마 노출시간은 60초, 120초, 180초로 설정하여 노출 시

Table 2. Surface roughness of the aluminum surface after abrading

The mesh number	#60	#220	#400
Ra (μm)	2.24	1.03	0.59

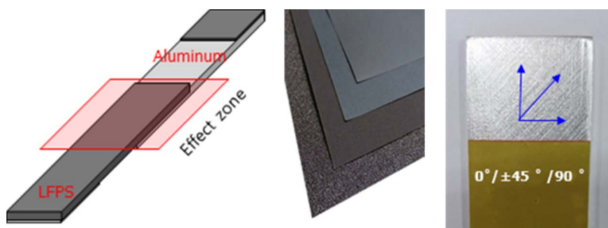


Fig. 3. Abrading surface treatment

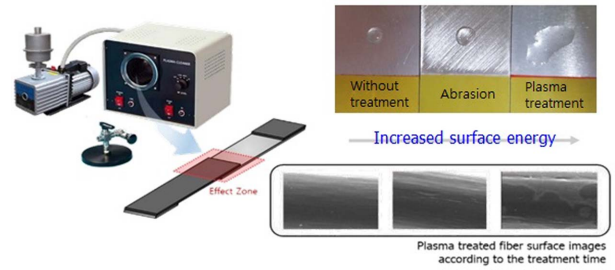


Fig. 4. Plasma surface treatment

간에 따른 접착 성능 변화 경향을 분석하였다.

연마를 통한 기계적인 표면처리와 플라즈마 표면처리를 동시에 적용하여 한 가지만 사용한 조건들의 시편들과 비교하였다. 연마 표면처리와 플라즈마 표면처리에서 가장 접착 특성이 우수했던 조건인 사포 #60(Ra: 2.24 μm)과 플라즈마 노출시간 (60초)을 적용하여 연마 처리 후 플라즈마 노출 순으로 진행했다. 또한, 연마 표면처리 후 알루미늄 접착 위치에 추가적으로 수지를 도포하여 기존의 연마를 통한 표면처리 접착부에 수지가 적절히 침투가 되었는지, 그리고 접착 강도에 개선이 있는지를 기존의 시편들과 접착 강도 비교를 통해 검증하였다.

2.3 접착 조인트 시험(Single lap-shear test)

다양한 표면처리 기법에 따라 접착 성능을 비교하기 위해 제작된 금형을 사용하여 Fig. 5에 나타난 크기의 LFPS-알루미늄 단면 겹치기 접착 조인트(Single-lap joint)를 제작하고 접착 조인트 시험을 수행하였다. 접착 조인트 시험은 ASTM D-1002와 ASTM D-5868의 기준을 따랐으며, 만능재료시험기(810, MTS, USA)를 활용하여 변위 제어 1.3 mm/

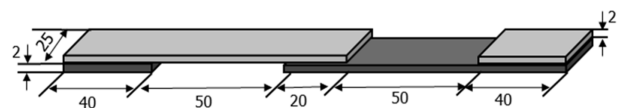


Fig. 5. Specification of a single lap joint specimen



Fig. 6. Environmental test setup for temperature condition



Fig. 7. Environmental test setup for moisture exposure

min의 일정한 속도로 실험을 수행하였다.

2.4 접착부의 사용 환경 조건

환경 온도 조건으로 일반 승용차 사용 온도인 저온 -20°C, 고온 50°C에서 접착 특성을 평가하였다. 온도 조절이 가능한 챔버 안에서 저온 -20°C와 고온 50°C의 온도를 유지시켜 접착 조인트 시험을 수행하였다. 상기 실험에서 얻은 최적의 표면 처리 조건을 적용하여 시편을 제작한 뒤 시편을 챔버에서 사용 온도 환경에 20분간 노출시켜 열평형에 이른 뒤 접착 조인트 인장시험을 진행하였다(Fig. 6).

또한, 수분이 흡수된 환경에서의 접착강도의 변화를 실험적으로 관찰하기 위해 최적의 표면처리 조건을 적용한 시편을 상온의 증류수가 들어있는 환경 실험용 수조에 1일부터 4주까지 노출시킨 뒤 접착 조인트 인장시험을 수행하였다(Fig. 7).

3. 결 과

3.1 표면처리 조건에 따른 접착 강도

연마 표면처리를 한 접착 조인트 시험의 결과는 Fig. 8과 같다. 사포 #60(Ra: 2.24 μm)에서의 접착강도가 최대 11.85 MPa까지 나타났으며, 아무 처리하지 않은 시편의 강도보다 최대 5배의 접착 강도를 가짐을 알 수 있었다. 표면 거칠기가 증가할수록 시편의 표면 접촉 면적 증가 및 인장

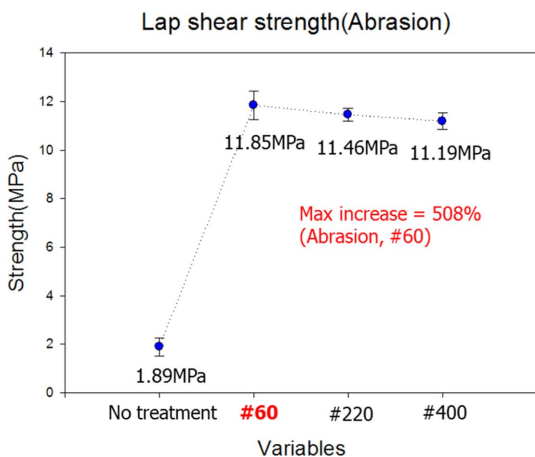


Fig. 8. Lap-shear test results for abrading surface treatment

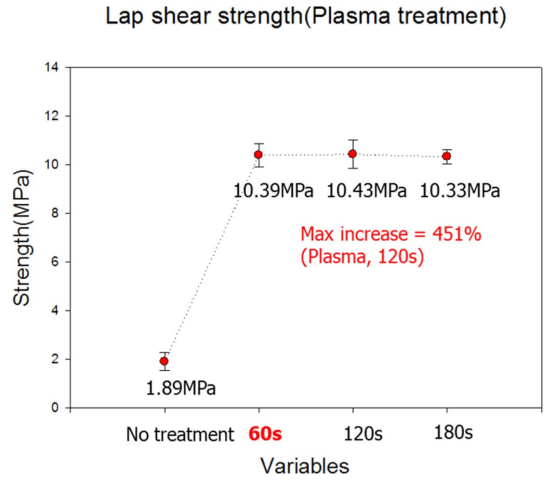


Fig. 9. Lap-shear test results for plasma surface treatment

력에 대한 저항력이 커짐에 따른 결과로 판단된다. 표면 거칠기가 가장 작은 사포 #400(Ra: 0.59 μm)의 접착강도는 11.19 MPa이고, 가장 높은 표면 거칠기 조건의 강도 대비 5% 가량 강도가 하락하였다. 이러한 결과로 볼 때 사포의 입자 크기는 접착강도에 큰 영향을 끼치지 않는 것으로 판단된다.

플라즈마 표면처리를 한 접착 조인트 시험의 결과들은 Fig. 9와 같다. LFPS와 알루미늄 양쪽 표면에 모두 플라즈마 처리한 결과이며, 아무 처리하지 않은 시편 대비 4.5배 가량 접착강도가 향상되는 것을 확인하였다. 플라즈마 노출 시간은 60초이면 플라즈마 효과가 포화상태에 이르러 120초, 180초를 노출시켜도 접착 강도에는 변화가 없었다.

연마 표면처리에서 접착강도가 가장 높은 조건인 사포 #60(Ra: 2.24 μm)과 플라즈마 효과가 포화된 노출 시간인 60초를 동시에 접착부에 표면처리한 혼성 처리와 사포 #60(Ra: 2.24 μm)으로 연마 표면처리한 알루미늄을 예열시킨 뒤 표면에 수지를 얇게 펴 바른 뒤 성형하여 접착 조인트 시험을 수행하였다. 단일 표면처리를 수행한 경우와 비교한 결과

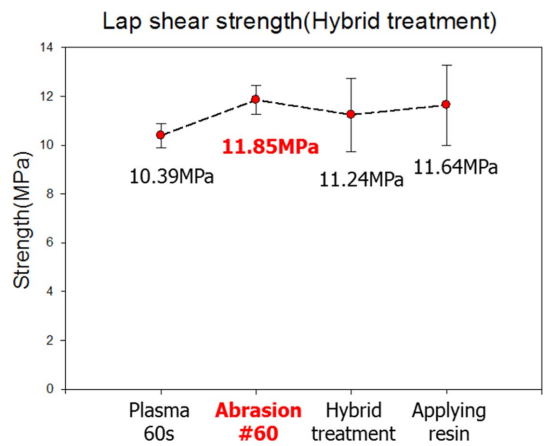


Fig. 10. Lap-shear test results for hybrid surface treatment

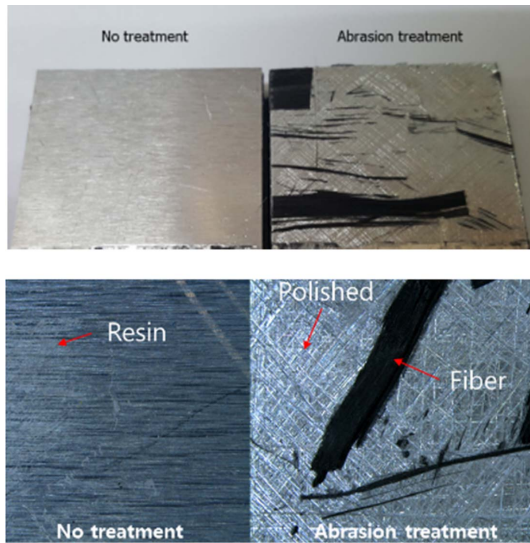


Fig. 11. Micrographs of the failed specimens

는 Fig. 10에 나타내었다. 혼성 표면처리를 수행한 시편의 실험 결과와 단일 표면처리를 한 경우를 비교한 결과 두 경우에 대해 유의미한 접착 강도 차이가 없음을 확인하였다.

접착 조인트 시험을 진행 한 후 Fig. 11의 사진과 같이 파 단면을 현미경으로 관찰하였다. 아무 처리도 하지 않은 시 편은 LFPS와 알루미늄 표면에서 파단이 일어나는 계면 파 괴(Interface failure)와 극히 일부 응집 파괴(Cohesive failure) 가 나타남을 확인하였다. 표면처리한 시편의 파괴 모드는 대부분이 응집 파괴(Cohesive failure)이며, 일부 섬유 파 단(Fiber breakage)이 관찰되었다. 접착강도가 큰 표면 처리일 수록 섬유 파단(Fiber breakage)의 파괴 모드가 크게 나타남 을 확인할 수 있었다.

3.2 사용 환경 조건에 따른 접착 강도

사용 환경온도 조건에서의 접착강도를 상온 조건과 비 교한 결과는 Fig. 12와 같다. 고온 환경(50°C)에서는 접착강

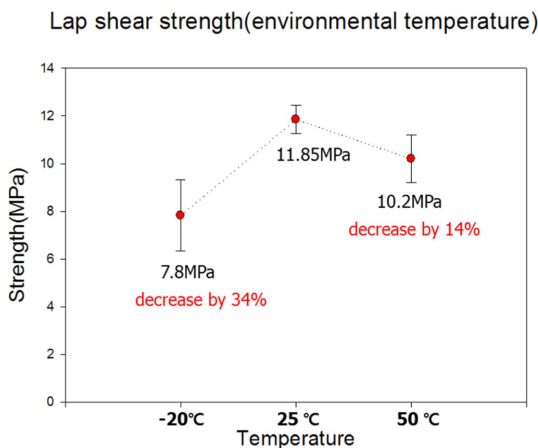


Fig. 12. Lap-shear test results under temperature condition

도가 상온 대비 14% 하락하였다. 그 원인으로서는 고온 환경 에서 수지의 고온 열화(Thermal degradation)에 의해 강도 저하가 발생하여 접착강도 저하를 유발한 것으로 판단된 다. 저온 환경(-20°C)에서는 접착강도가 상온 대비 34% 하 락하였다. 저온에서는 상온보다 수지의 영계수가 다소 상 승하지만, 온도가 낮아질수록 취성을 가지게 되며, 성형 온 도인 150°C에서 -20°C까지의 온도 차이가 크므로 이종 재 료 계면에서 잔류 열응력이 크게 발생하여 접착강도를 저 하시킨 것으로 판단된다.

수분 노출 기간에 따른 시편의 무게 변화와 접착 조인트 시험 결과는 Fig. 13과 같다. 환경 실험용 수조에서 수분 노 출 후 정밀 전자저울을 통해 무게를 측정하였으며, 동일 조 건에 대해 3개의 시편을 준비하였다. Fig. 13의 (b)에 나타 낸 흡수율은 다음 (1) 식을 통해 계산하였다.

$$\frac{W_w - W_n}{W_n} \times 100 = R_w \tag{1}$$

여기서 W_w 는 수분에 노출된 시편 무게, W_n 은 수분이 노출 되지 않은 시편 무게, R_w 는 흡수율은 나타낸다. 실험 결과

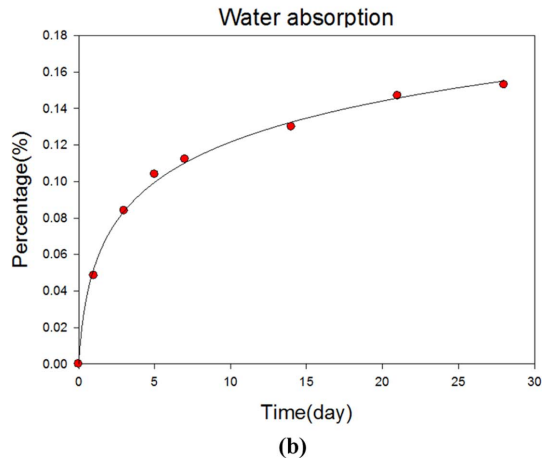
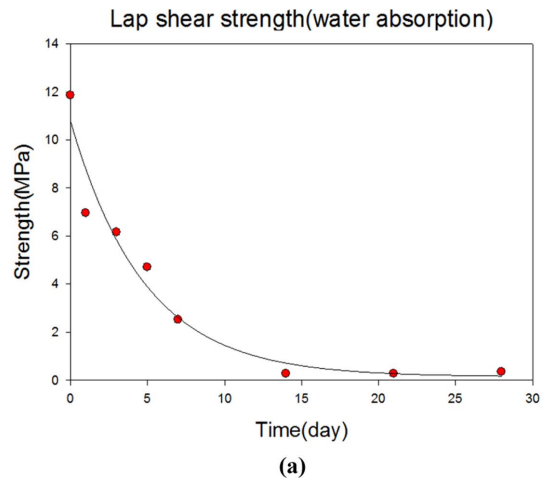


Fig. 13. Strength and weight change due to moisture exposure; (a) Lap-shear strength, (b) Water absorption rate

에서 볼 수 있듯이 수분에 노출된 시편은 7일까지 빠르게 수분을 흡수하고 14일부터는 시편의 흡수율이 거의 포화되었다. 수분 노출 후 접착 조인트 시험을 수행한 결과, 14일 이상 노출된 시편은 접착강도가 크게 감소하는 경향을 볼 수 있다. 7일 이후에 시편의 질량은 조금씩 증가했지만 7일과 14일 사이에서 피접합물과 접착제 사이 경계층에 수분 침입이 이미 포화되어 접착강도가 크게 하락한 것으로 판단된다. 질량 증가와 접착강도는 x 축에 대하여 대칭인 경향을 나타내었으며, 이는 수분 흡수량이 접착강도와 반비례의 상관관계를 나타냄을 의미한다.

4. 결 론

본 연구에서는 LFPS와 알루미늄에 여러 가지 표면처리를 한 후 접착강도의 변화를 실험적으로 관찰하였다. 표면처리의 종류에 따른 접착강도 비교를 통해 실제 제품 성형 및 대량 생산에 적합한 표면처리 조건을 도출하였다. 실험 결과를 통해 접착면은 안정적인 사포 종류 #60(Ra: 2.24 μm)의 연마재를 이용한 기계적인 표면처리가 가장 높은 접착강도를 나타냈다. 플라즈마 표면처리의 경우 연마 처리보다 접착강도가 13% 낮았지만 강도 상의 차이가 크지 않고, 접착부의 복잡한 형상이나 대량생산의 용이성 측면에서 더 적합한 방법이라 판단된다.

사용 환경온도에 따른 접착강도의 변화를 실험적으로 관찰한 결과 타 연구자들의 결과와 마찬가지로 상온에서의 접착강도에 비해 고온 및 저온 환경에서 접착강도의 저하가 관찰되었으며, 특히 저온 환경에서의 강도 저하의 원인은 접착 계면에서의 큰 잔류 열응력과 취성을 갖는 재료의 특성이 원인으로 판단된다. 수분 노출 실험을 통해 수분 흡수량과 접착강도의 관계를 확인하였으며, 수분환경 노출 기간이 7일 이상부터는 피접합물과 접착제 사이 층에 수분 침입이 이미 포화됐다고 판단된다. 이러한 현상은 금속 피접착물을 사용할 경우 급격한 접착강도 저하가 예상되므로 LFPS를 활용한 동시 경화 접착법을 이용한 이종 재료 간 하이브리드 구조 설계 시 주의해야 할 것으로 판단되며, 부식과 관련하여 추가 연구가 필요한 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 국방부 민군기술 협력사업(드레이핑용 탄소장섬유 강화 열경화성 Sheet 제조 및 부품 성형기술 개발)의 지원을 받아 수행된 연구결과입니다.

REFERENCES

1. Bae, J.H., Han, M.G., and Chang, S.H., "Formability of Complex Composite Structures with Ribs Made of Long Carbon-fiber-reinforced Prepregs," *Composite Structures*, Vol. 168, 2017, pp. 56-64.
2. Cai, H.J., Bashar, M.T., and Picot, J.J., "Thermal and Mechanical Anisotropy in Compression Molded Carbon Fiber/resin Composites," *Polymer Composites*, Vol. 26, No. 5, 2005, pp. 684-688.
3. Wan Y., and Takahashi, J., "Tensile and Compressive Properties of Chopped Carbon Fiber Tapes Reinforced Thermoplastics with Different Fiber Lengths and Molding Pressures," *Composites: Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 25, 2016, pp.271-281.
4. Son, D.S., Bae, J.H., and Chang, S.H., "A Study on the Bonding Strength of Co-cured T800/epoxy Composite-aluminum Single Lap Joint According to the Forming and Additional Pressures," *Composite Research*, Vol. 24, No. 5, 2011, pp. 23-28.
5. Encinasa, N., Oakleyb, B.R., Belcherc, M.A., Blohowiac K.Y., Dillinghamb, R.G., Abenojara, J., and Martineza M.A., "Surface Modification of Aircraft Used Composites for Adhesive Bonding," *International Journal of Adhesion and Adhesives*, Vol. 50, 2014, pp. 157-163.
6. Kim, J.G., Choi, I.B., and Lee, D.G., "Contact Angle and Wettability of Hybrid Surface-treated Metal Adherends," *Journal of Adhesion Science and Technology*, Vol. 27, No. 7, 2013, pp. 794-810.
7. Lee, D.G., and Cho, D.H., "Prediction of the Tensile Load Capability of Co-cured Steel-composite Tubular Single Lap Joints Considering Thermal Degradation," *Journal of Composite Materials*, Vol. 34, No. 8, 2000, pp. 689-722.
8. Mubashar, A., Ashcroft, I.A., Critchlow, G.W., and Crocombe, A.D., "Moisture Absorption-desorption Effects in Adhesive Joints," *Journal of Adhesion and Adhesives*, Vol. 29, No. 8, 2009, pp. 751-760.