Composites Research

Vol. 30, No. 6, 416-421 (2017)
DOI: http://dx.doi.org/10.7234/composres.2017.30.6.416
ISSN 2288-2103(Print), ISSN 2288-2111(Online)

Paper

CFRP/금속간 접합력 강화를 위한 접합공정 연구

권동준* · 박성민* · 박종만** · 권일준*†

A Study on Bonding Process for Improvement of Adhesion Properties Between CFRP-Metal Dual Materials

Dong-Jun Kwon*, Sung-Min Park*, Joung-Man Park**, Il-Jun Kwon*†

ABSTRACT: The structural adhesive have been manufactured for improvement of bonding process between CFRP and metal. The optimal condition for bonding process were investigated by evaluating the lap shear strength with amount of adhesive and curing time and the surface treatment of the CFRP. To confirm proper adhesion conditions, the fracture sections between CFRP and metal was observed using reflection microscope. Not only the improvement of the adhesion condition was important, but surface treatment on CFRP was also important. The optimal curing temperature was at 180°C for 20 minutes. The improvement for adhesive property was confirmed After surface treatment on CFRP. The optimal amount of structural adhesive for bonding between CFRP and metal was 1.5×10^{-3} g/mm^2. Through the optimization of bonding process, the improvement of mechanical property over 10% is confirmed in comparison with existing adhesive.

초 록: CFRP와 금속간의 접합공정이 개선된 구조용 접착제가 제조되었다. 구조용 접착제에 대한 경화시간, 기지재료의 표면상태 그리고 접착제의 양에 따른 최적의 접합공정 조건을 랩쉐어 실험을 통하여 파악하였다. 적합한 접합조건을 확인하기 위해 이종재료간의 접합 파단면 상태를 반사현미경을 이용하여 평가하였다. 이종재료간 접합력 향상을 위해 접착제의 개선뿐만 아니라 CFRP의 표면처리 또한 중요하였다. 구조용 접착제의 경우 180도 조건에 20분의 경화온도 조건이 최적이었으며, CFRP의 표면 처리에 따라 접합특성이 향상됨을 확인하였다. 이종재료 간 접합을 위해 구조용 접착제의 양은 1.5×10^{-3} g/mm^2 조건일 때 최적이었다. 접합공정의 개선 및 최적화를 통해 기존의 접착력 대비 10% 이상의 물성 강화를 나타냄을 확인하였다.

Key Words: 구조용 접착제(Structural adhesive), 접합공정(Adhesion process), 접착특성(Adhesion properties), 탄소섬유강화 복합재료/금속 이종소재(CFRP/metal dual material)

1. 서 론

차량용으로 사용하기 위한 복합재료에 대해 연구의 수준이 성장기를 지나 성숙기에 다다랐으며, 실질적인 부품화 공정의 최적화를 이루기 위한 연구가 진행 중이다[1]. 최근 금속소재의 개발과 기가스틸, Mg 등 경량 금속소재의 확대로 탄소복합재료(CFRP, carbon fiber reinforced plastic)만을 이용하기 보다 금속과 CFRP를 혼합하여 각 소재의 장

Received 3 November 2017, received in revised form 22 December 2017, accepted 26 December 2017

*Polymer Resin Team, Hybrid New Material Division, Korea Dyeing and Finishing Technology Institute
*†Polymer Resin Team, Hybrid New Material Division, Korea Dyeing and Finishing Technology Institute, Corresponding author (E-mail: seaforces@dyetec.or.kr)
**Department of Materials Engineering and Convergence Technology, Research Institute for Green Energy Convergence Technology, Gyeongsang National University

점을 활용할 수 있는 이종소재 응용화 단계에 있다[2,3].

금속과 복합재료간의 피로특성 및 강성, 내열성 등 특성이 다르기 때문에 발생되는 여러 내구성의 문제가 있고, 각기 다른 소재간의 부분 부품화에 따른 이음부분 접합에 대한 관심도가 높아졌다[4,5].

차량용 부품의 경우 2000년대 후반부터 금속과 금속간의 체결기법에 대해 다양한 연구결과가 발표되었다. 마찰교반접합(friction stir welding, FSW)와 같이 용접의 근본원리를 이용한 접합기술이 발달하였으며, 리벳을 이용하거 핀을 이용하여 금속과 금속간의 결합력 강화와 생산속도 향상을 시도하였다. 하지만 2010년 이후, 환경규제에 따른 해결책으로 복합재료의 연구개발 및 적용 사례가 확대되었다. 차량용 부품, 샷시 분야에서도 금속과 금속을 용접하던 공정라인에 CFRP와 금속간의 접합력 강화를 위한 구조용 접착제 및 새로운 접합공정이 필요해졌다. 특히 독일의 거대 차량 완제품 제조업체의 경우 금속의 장점과 복합재료의 장점을 동시에 실현하고자 이종소재간 접합력 강화에 대한 연구를 실시하고 있는 상황이다[6,7].

기본적인 용접의 기술로는 CFRP와 금속간의 접합을 유지 할 수 없기 때문에 CFRP와 금속간의 홀 작업 이후 볼트 또는 리벳, 핀을 이용한 접합시키는 기술이 연구되고 있다. 하지만, CFRP에 홀 가공을 할 경우 발생되는 delamination과 천공작업을 위해 사용되는 드릴공구의 내구성에 따른 공구의 단가문제, 작업성 효율이 문제가 된다. 차량용 부품을 제조하기 위해 항공용 리벳을 바로 적용하기에는 단가의 문제가 있기 때문에 경제적이면서 접합성능이 만족스러운 기계적 접합법과 기존의 항공분야에서 CFRP와 금속간의 접합을 위해 사용되었던 구조용 접착제와 같은 화학적 접합법, 이 두 접합방법을 혼용하는 방식으로 CFRP와 금속간의 접합, 차량용 부품화 최적화를 연구하고 있는 중이다[8,9].

이종소재가 연구개발 대상으로 부각된 당시, 항공용 접착제로 많이 알려진 구조용 접착제를 이용하여 차량용 부품간 이종접합을 실시하였다. 하지만 고강도 및 고접착특성을 요구하는 항공용 접착제에 비해 차량용 구조접착제의 경우 진동 안정성, 소음 차단성, 작업 성능 안정화를 위한 고점도와 강인성, 경제성을 필요로 하기 때문에 직접적인 적용에 한계가 있었다[10,11]. 따라서 차량용 구조 접착제의 경우 내부 첨가제의 양을 늘려 기능성과 점도 조절이 가능해야 하며, 고속 경화 성능을 통해 공정라인에서 적절한 경화가 이루어져야 한다. 때문에 접착제 및 접합공정에서 불량이 발생되지 않도록 많은 숙련도와 기술 데이터 구축을 필요로 한다[12,13].

본 연구에서는 차량용 구조 접착제로 활용되는 1액형 에폭시 접착제를 이용하여 CFRP와 금속간의 접합공정상의 변수에 따른 접합력 차이를 관찰하였다. CFRP 및 금속 기지의 표면차이에 따른 접합력 변화, 접착제의 경화 시간별 접착력 차이를 관찰하였으며, lap shear 실험에 의해 발생된 lap shear strength (LSS) 강도 결과에 대한 히스토그램 분석과 평균 LSS에 따른 파단면 상태를 정리하여, 상관관계를 반사현미경을 이용하여 확인하였다. 마지막으로 이종소재간 접착력 강화를 위한 접합공정상의 개선 방법을 이용하여 접합공정에 따른 이종소재간 접착력 개선을 시도하였다.

2. 실 험

2.1 재료

본 논문에서 이종재료간 접합 공정에서의 특성을 평가하기 위해 구조 접착제로 사용하는 일액형 접착제(D, 코스폴, 한국)을 사용하였다. 이종재료간 접합력 평가를 위해 CFRP와 금속을 사용하였다. 티비카본(주)에서 제작한 UD prepreg를 이용하여 1.5 mm의 두께를 UD CFRP를 가압성형을 통해 확보하여 이용하였다. 또한 직물 prepreg(SKYFLEX, SK chamical Co., Ltd., 한국)를 이용하여 직물 타입의 CFRP를 제작하였다. 금속 기지는 현대제철(주)에서 사용하는 SPR440을 사용하였다.

2.2 실험 방법

2.2.1. Lap shear 실험

CFRP와 금속간의 접합력을 평가하기 위해 ASTM D5868 규격을 따랐으며, 시편을 축소시켜 실험조건에 따라 5회의 실험 결과를 정리하였다. 평균 값을 도출하여 각 실험변수에 따른 접합강도의 경향을 확인하였다[14]. Lap shear 실험을 위해 단축인장실험 조건으로 만능시험기(AGS-X, 동일시마즈, 일본)를 이용하였다. 접합면적은 10 mm × 10 mm이며, 10 mm/min의 속도로 실험하였다. 접착제를 도포하고 접합면에 가한 압력은 2 bar이며, 접착제 경화를 위해 설정한 경화온도는 180°C이다.

2.2.2. CFRP/금속 간 최적의 접합공정 조건 평가

CFRP/금속과의 이종접합력 평가를 위해 접합 공정상의 문제를 확인하고 시편의 사진 및 파단면의 상태를 반사현미경(SMZ25, 니콘코리아, 한국)으로 관찰하였다. 파단면의 상태와 접합강도간의 상관관계를 정리하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 접착제 도포 및 양, 경화 시간에 따른 영향

Fig. 1은 CFRP/금속간의 접합을 시도할 때 접착제도포 양에 따른 영향을 정리한 결과이다. 기지재료는 직물타입의 CFRP와 금속을 사용하였다. 접착제의 양이 접착력에 영향을 미친다는 결과를 확인할 수 있었다. 접착력 강화를 기대하며 접착제를 기지재료에 많은 양을 도포하는 경향이 있다.

접착메커니즘에서 접착제의 두께가 얇을수록 높은 계면

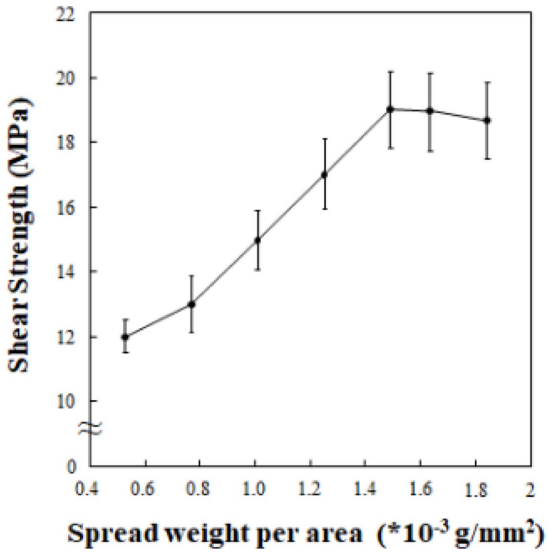

Fig. 1. Lap shear results of CFRP/metal with different amount of adhesive

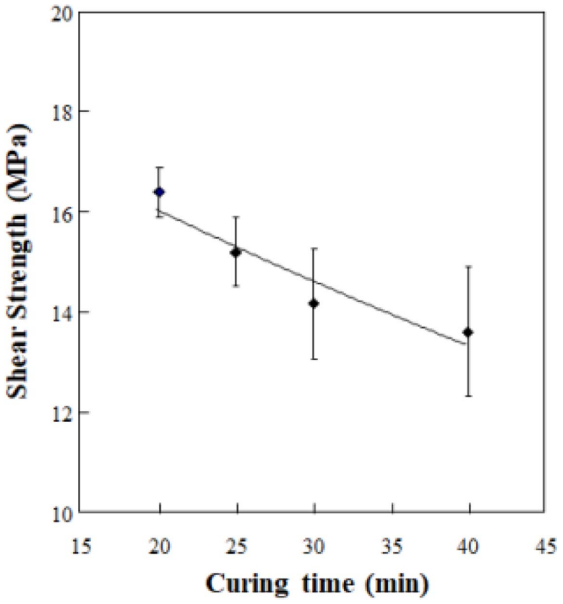

Fig. 2. Lap shear results of CFRP/metal with different curing time of adhesive

안정성을 가지기 때문에 최적의 접착제 도포양이 존재함을 확인할 수 있었다. 접착제의 양이 1.5×10^{-3} g/mm^2 수준일 경우 LSS 실험 결과에서 변곡점을 나타냈으며, 그 이상 접착제를 도포할 경우 접착력은 유지 및 저하의 결과를 나타내었다. 접착제의 양을 도포면적에 비해 적을 경우 완벽한 접착제의 도포가 이루어지지 못하기 때문에 반드시 적정 수준에 맞게 접착제를 도포하여야 함을 확인하였다.

Fig. 2는 접착제의 경화시간을 달리하였을 발생되는 이종소재간의 접착력 변화를 나타낸 결과이다. 기지재료는 직물 CFRP와 금속을 이용하였다. 일반적으로 차량용 구조접착제는 180도의 경화온도와 20분 정도 경화 시간을 가진다. Fig. 2의 결과와 같이 일반적으로 180도 20분의 조건에서 가장 높은 접합력을 가졌다. 접착제 경화시간이 길어짐에 따라 접착력은 서서히 저하되는 경향을 보였다. 접착제 도포 최적화 및 고인성 접착특성을 위해 접착제의 점도는 5만 cps 수준으로 높은 편이며, 접착제의 내부에 다양한 입자 및 첨가제를 넣어 에폭시의 점도를 높이는 것이 일반적이다. 고온 조건에서 경화되는 구조용 접착제의 경우 경화시간이 길어짐에 따라 특성 강화용 첨가제가 대부분 고무계열일 가능성이 높은데, 고온의 경화시간에 의해 손상을 받았기 때문에 접착제의 특성이 약해졌다고 예상할 수 있다. 4관능기와 같은 고분자 구조를 조절하는 화학적 조성의 개질이 아닌 첨가제 활용에 따른 접착제 구성을 조절하기 때문에 차량용 구조 접착제의 경우 최적의 경화시간이 존재하였다.

Fig. 3과 같이 접착제의 경화시간에 따라 파단면의 상태가 크게 달라진다. Fig. 3(a)와 같이 접착제의 경화가 완전이 이루어지지 않은 15분 경화 조건에서는 고점도의 액상형태를 띄는 접착제가 고체화 되어가는 과정임을 확인할 수 있었다. 용액상태이기 때문에 현미경의 불빛 반사가 되는 상태였다. 하지만 20분의 경화를 실시한 경우 파단면에 크레이즈의 발생을 관찰할 수 있었고,균열의 정도가 안정적인 상태임을 확인할 수 있었다. Fig. 3(c)와 같은 경우 30분 동안 경화를 시킨 뒤 실험 후의 파단면 결과이다. 파단면에서 접착제의 응집이 크게 발생되었으며, 접착제 자체의 취성이 높아져 파단면에 접착제 층의 큰 균열발생을 확인할

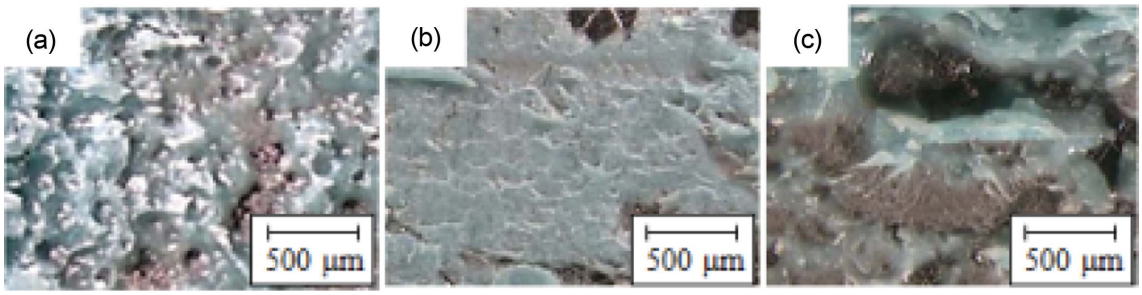

Fig. 3. Fractured surface of CFRP/metal with different curing time: (a) 15 min, (b) 20 min and (c) 30 min

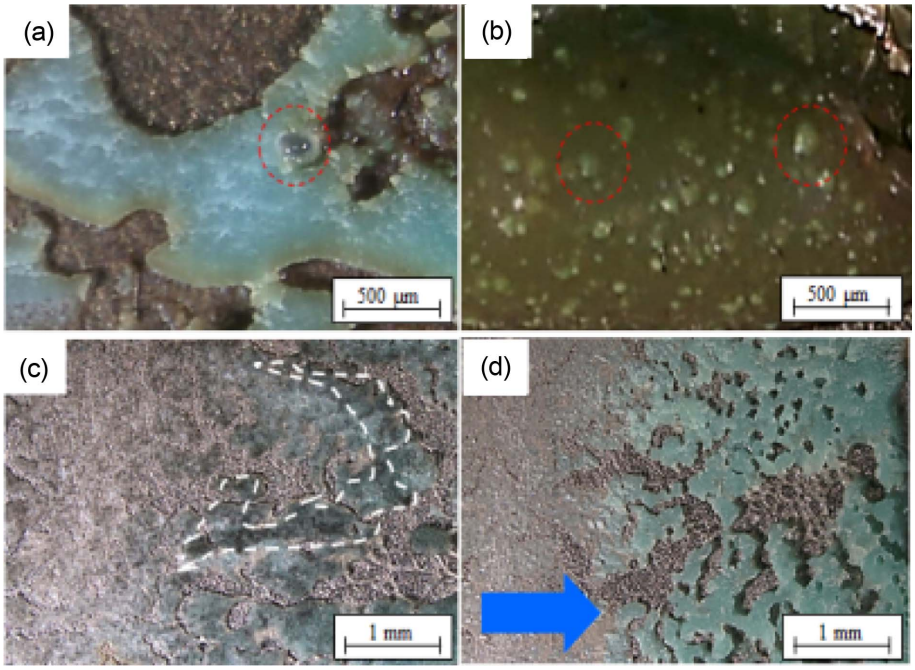

Fig. 4. Fractured surface of CFRP/metal with different parameter of spreading glue on subtract: (a) Void; (b) particle dispersion; (c) contamination and (d) worker's error

수 있었다.

Fig. 4와 같이 접착제 도포 방법에 의해 4종류의 이종재료 접착에 큰 영향을 주요 원인을 정리해 볼 수 있다. 50,000 cps 이상의 점도를 가지는 구조용 접착제는 도포 공정에 의해 LSS가 달라질 수 있다. Fig. 4(a)와 같이 접착 층에서 발생된 보이드를 나타낸다. 보이드는 완벽한 접착면 형성을 방해하기 때문에 이종소재간 접합 공정에서 가장 중요하게 해결해야하는 문제이다. 5만 cps 이상의 정도를 가지는 구조용 접착제의 경우 접착제를 도포하고 난 뒤 기지재료의 표면에 있는 기체를 접착제로 덮었을 경우 기지 표면의 기체가 외부로 나가지 못하고 접착제 층에 머무르게 된다. 이때 보이드가 형성되기 때문에 진공 또는 가압공정을 통해 보이드 발생 최소화를 이루어야 한다. Fig. 4(b)의 경우와 같이 접착제 내에 삽입된 기능성 첨가제의 분산도 문제이다. 접착제 내의 첨가제 분산도가 안정적이지 못할 경우 균일한 응력전달을 접착면에서 균일하게 이루어지지 못하게 된다. Fig. 4(c)의 경우 표면의 청결함이 문제가 된다. 표면이 더러운 경우 접착제와 기지재료에 접촉하는 부분을 감소시키며, 접착면적이 감소함에 따라 접착력이 불균일하게 나타난다. CFRP의 경우 밀링 및 홀 가공과 같은 후처리 공정에 의해 카본입자가 표면에 존재할 수 있으며, 금속의 경우 방청액, 윤활유 등 소수성을 띄는 액상과 미세 철가루가 contamination 역할을 하기 때문에 문제가 된다. 마지막으로 Fig. 4(d)과 같이 접착제의 점도가 5만 cps 이상의 고점도일 경우 문제가 됨을 나타낸다. 고점도의 접착제이기 때문에 반드시 작업자에 의해 접착층의 불안정한 상태를 나타내기도 한다. 로봇을 이용하여 접착제를 도포한다고 하여도 이종소재간에 가해지는 가압 공정에서 축이 안 맞을 경우 문제가 되며, 접착제의 흐름성이 없기 때문에 접착층의 불안정화가 발생 될 수 있는 점이 접착공정에서의 문제점이다. 따라서 이를 개선하기 위해 소재 및 공정부분에서 많은 노력을 하여야 이종재료간의 접합력 향상 및 균질성 확보를 할 수 있었다.

3.2 UD CFRP와 금속간의 접합강도 비교

Fig. 5는 UD CFRP 기지를 이용할 경우 UD CFRP의 표면 상태에 따라 발생되는 접착력의 차이를 정리한 결과이다. UD CFRP의 경우 UD 특성상 표면 방향성을 가진다. UD 0도 조건과 UD 90도 표면 차이에 따라 접착력 변화를 관찰할 수 있었다. UD CFRP의 표면에 따라 접착제가 인장응력 방향에 대해 힘 전달이 되는 UD CFRP와 접착제 간의 접착되는 표면의 방향이 달라진다.

UD CFRP의 표면 각도에 따라 약 10%의 물성 차이를 보였다. 0도 조건의 표면보다, UD 90도 표면 조건이 이종소재간 접합강도가 우수하였다. 이는 0도 UD CFRP 표면조건에 비해 90도 UD CFRP 표면조건일 경우 lap shear 실험 시 단축 인장 방향에 더 큰 표면 마찰저항을 받는 미세 표면을 가지기 때문에 발생된다고 예상해볼 수 있으며, 이러한 표면차이가 10% 정도의 접착력 강화 효과를 나타낸다고 설명할 수 있었다.

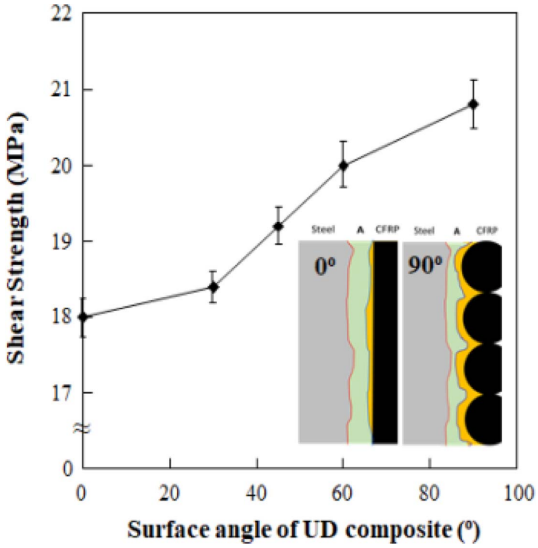

Fig. 5. Lap shear results of CFRP/mater with different angle of UD CFRP surface

3.3 이종재료간 접착력 강화방법 및 접착력과 파단면간의 정리

이종소재간 접합력 향상을 위한 방법으로 Fig. 6과 같이 이종재료간의 접합면 증가를 유발시켜 접착력을 높이는 이종재료간 모서리 활용에 따른 접착제의 크랩프 효과를 활용할 수 있다. 접착제를 도포할 때 인위적으로 접착제를 이종재료간 모서리 부분에 도포 할 경우 접착제의 접착력과 접착제가 기지재료를 강하게 잡을 때 가지는 접착제의 강인성 및 강성의 영향으로 이종소재간 접착력이 향상될 수 있었다. LSS 시편을 제작하면 총 3개의 모서리를 만들 수 있으며, 모서리 부분에 접착제가 존재할 경우, 기존대비 접착력이 15% 가량

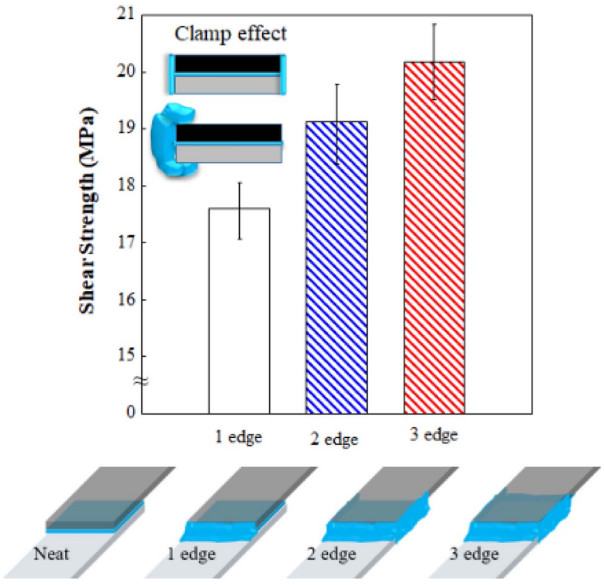

Fig. 6. Lap shear of CFRP/metal with edge effect

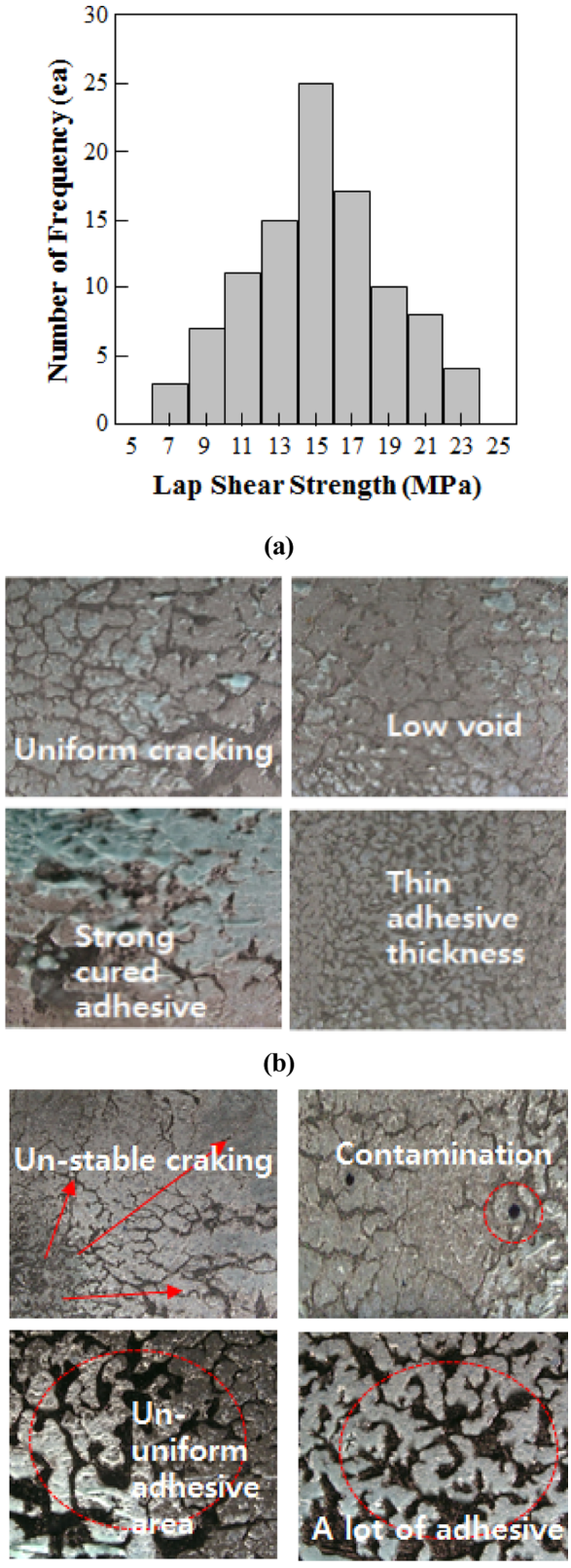

Fig. 7. Fractured surface of lap shear specimens: (a) histogram of LSS test results; (b) LSS was 15 MPa upper case; (b) LSS 15 MPa under case

향상되며, 균질성 높은 접합면을 형성됨을 확인하였다.

Fig. 7은 이종소재간 접합력에 대한 전체적인 분포 결과와 이종소재간 접합력의 평균값을 기점으로 시편의 파단면 형상을 정리한 결과이다. Fig. 7(a)는 100번의 이종재료간 LSS 실험결과에 대한 히스토그램을 정리한 그림이다. 평균이 15.06 MPa를 나타내며, 표준분포가 3.22, 분산값이 10.5로 비교적 표본값에 대한 분포가 안정적임을 확인할 수 있었다. 평균적으로 Fig. 7(b)와 같은 파단면을 가지는 경우 15 MPa 이상의 전단력을 가지며, 최대 20 MPa까지도 전단력을 나타내었다. 고점도의 접착제임에도 불구하고 파단면의 상태를 확인해보면, 균일한 크기를 가지는 균열 전파의 형상과 완벽한 접착제의 경화 상태 그리고 얇은 접착제의 두께 및 파단 형상을 나타내었다. Fig. 7(c)의 경우 15 MPa 이하의 LSS 시편의 파단면을 나타낸다. 파단면으로 정리할 수 있듯이, 균열 전파의 모습이 불균일하거나, 파단면 표면에 10 μm 이상의 직경을 가지는 이물질이 존재하거나, 접착제의 층이 안정화 되지 못하고 높낮이 편차가 큰 파단면의 경우 낮은 접합력을 나타내었다.

4. 결 론

본 연구는 CFRP와 금속간의 접합을 위해 접합공정에서의 중요한 변수를 확인하고 균질한 이종재료간 접합 력을 확보하기 위한 접합변수를 확인하였다. 접착제의 경화시간에 따라 접착력이 달라지기 때문에 접착제에 맞는 경화시간(20분)을 가져야 하며, 접착제의 도포 균일성, 접착제 내 입자의 분산 균질성, 접착면 및 접착제 내에서의 보이드 최소화 등 접착공정의 변수에 의해 이종소재간 접착력이 변화됨을 확인하였다. 때문에 공정에 맞는 최적화 데이터 구축을 통해 이종소재간 접합안정성 강화가 필요함을 확인하였다. 접착 파단면의 형상에 따라 접합력의 차이를 나타낼 수 있었으며, 접착제 도포 시 모서리 부분을 활용한다면 더 높은 접착력 확보가 가능함을 확인하였다. 궁극적으로 접착제의 파단면과 접착제가 가지는 LSS 강도간에 상관관계가 있음을 확인하였다.

후 기

본 논문은 2017년 산업핵심기술개발사업 'CFRP-금속 Hybrid 일체화 고속 성형공정기술 및 이를 적용한 40%이상 경량화된 자동차 Underbody structure 개발'(No. 10063368)의 지원을 받아 연구된 논문입니다. 관계자 여러분께 감사드립니다.

REFERENCES

1. Wang, Z.J., Kwon, D.J., Park, J.K., Lee, W.I., and Park, J.M., "Microstructure and Ablation Performance of CNT-Phenolic Nanocomposites", *Composites Research*, Vol. 26, No. 5, 2013, pp. 309-314.
2. Shin, D.W., Kim, J.J., Lee, J.H., Kwon, I.J., and Park, S.M., "Evaluation on the Effect of Beads for Adhesive Improvement of CFRP and Aluminum", *Composites Research*, Vol. 30, No. 4, 2017, pp. 254-260.
3. Wang, B., Bai, Y., Hu, X., and Lu, P., "Enhanced Epoxy Adhesion between Steel Plates by Surface Treatment and CNT/Short-Fibre Reinforcement", *Composites Science and Technology*, Vol. 127, 2016, pp. 149-157.
4. Lee, B.E., Park, E.T., Ko, D.C., Kang, B.S., and Song, W.J., "Evaluation of Fracture Behavior of Adhesive Layer in Fiber Metal Laminates using Cohesive Zone Models", *Composites Research*, Vol. 29, No. 2, 2016, pp. 45-52.
5. Shin, P.S., Kim, J.H., Choi, J.Y., Kwon, D.J., Lee, S.I., and Park, J.M., "Comparison of Mechanical and Interfacial Properties on Chemical Structures of Acrylic and Epoxy Adhesives", *Composites Research*, Vol. 29, No. 2, 2016, pp. 79-84.
6. Lee, K.J., "Recent Research & Development Trend on Friction Stir Welding and Friction Stir Processing", *Journal of KWJS*, Vol. 31, No. 2, 2013, pp. 26-29.
7. Moisala, A., Li, Q., Kinloch, I.A., and Windle, A.H., "Mechanical Properties and Microstructure on Dissimilar Friction-Stir-Weld of Aluminium Alloys", *Journal of the Korean Society of Marine Engineering*, Vol. 35, No. 1, 2011, pp. 75-81.
8. Kim, T.G., Kyung, D.S., Son, U.C., and Park, S.Y., "Measurements of Defects after Machining CFRP Holes Using High Speed Line Scan", *Journal of the Korean Society for Precision Engineering*, Vol. 33, No. 6, 2016, pp. 459-467.
9. Kim, D.Y., Kim, H.S., and Kim, J.H., "Evaluation on Effect of Hole Machining for Application of M1.0 Subminiature Screw to CFRP Laminate Using FEM", *Journal of the Korean Society for Precision Engineering*, Vol. 34, No. 2, 2017, pp. 95-99.
10. Hwang, Y.E., and Yoon S.H., "Effect of Combined Environmental Factors on Adhesive Shear Strengths and Chemical Structures of Adhesives", *Composites Research*, Vol. 24, No. 1, 2011, pp. 31-36.
11. Tang, Y.J., Alva, G., Huang, X. Su, D., Liu, L., and Fang, G., "Thermal Properties and Morphologies of MA–SA Eutectics/CNTs as Composite PCMs in Thermal Energy Storage", *Energy and Buildings*, Vol. 127, 2016, pp. 603–610.
12. Jang, J.H., Sung, M.C., and Yu, W.R., Numerical Simulation of the Delamination Behavior of Polymeric Adhesive Tapes Using Cohesive Zone Element", *Composites Research*, Vol. 29, No. 4, 2016, pp. 203-208.
13. Kil, M.G., Park E.T., Song, W.J., and Kang B.S., "Study on Enhancement for Interfacial Energy Release Rate of Adhesive Layer in Fiber Metal Laminates using Taguchi Method", *Composites Research*, Vol. 29, No. 5, 2016, pp. 249-255.
14. Kim, J.H., Kwon, D.J., Shin, P.S., Beak, Y.M., Park, H.S., Moon, S.O., and Park, J.M., "Improvement on Interfacial, Thermal, and Water Resistance Properties of Wood Sandwich Composites for Stone Bed using CNT-Animal Glue Adhesive", *Composites Research*, Vol. 30, No. 4, 2017, pp. 235-240.