

플라즈마를 적용한 알루미늄의 표면처리가 알루미늄/CFRP 복합재의 접합강도에 미치는 영향

이경엽[†] · 양준호^{*} · 최낙삼^{**}

(2001년 2월 14일 접수, 2001년 8월 27일 심사완료)

Effect of Aluminum Treatment by Plasma on the Bonding Strength Between Aluminum and CFRP Composites

Rhee Kyong Yop, Yang Jun Ho and Choi Nak Sam

Key Words: DC Plasma(DC 플라즈마), Contact Angle(접촉각), T-peel Strength(T-peel 강도)
Single Lap Shear Specimen(단일 랩 전단 시편), Adhesive Bonding(접착제 본딩)
Composite Patch(복합재 패치)

Abstract

This paper documents the effect of surface treatment of aluminum on the bonding strength of aluminum/CFRP composites. The surface of aluminum panel was treated by DC plasma. The optimal treatment condition of the aluminum was determined by measuring the contact angle and T-peel strength as functions of mixture ratio of acetylene gas to nitrogen gas. The mixture ratios used were 1:9, 3:7, 5:5, 7:3, and 9:1. Lap shear tests and T-peel tests were performed using surface-treated aluminum/CFRP composites and regular aluminum/CFRP composites. The results showed that the contact angle was minimized and the T-peel strength was maximized for the mixture ratio of 5:5. The results also showed that the shear strength of surface-treated aluminum/CFRP composites was 34% greater than that of regular aluminum/CFRP composites. The T-peel strength of surface-treated aluminum/CFRP composites was also 5 times greater than that of regular aluminum/CFRP composites.

1. 서 론

80년대 중반 이후 균열이 발생한 항공기의 수명 연장을 위해 복합재 패치(composite patch)를 균열 부위에 접착 보수하는 방법을 개발하여 적용하고 있다. 복합재 패치를 적용해 항공기 기체를 보수하는 기술과 관련된 발표된 기존의 주요 논문은 다음과 같다. Baker⁽¹⁾는 Mirage III 전투기에 있어 균열이 발생된 날개 외판을 보론섬유/에폭시 복합재 패치로

[†] 책임저자, 회원, 경희대학교 기계산업공학부

E-mail : rheeky@khu.ac.kr

TEL : (031)201-2565 FAX : (031)202-6693

^{*} 회원, 주선태크

^{**} 회원, 한양대학교 기계산업공학부

보수하는 논문을 발표하였다. Ong 등^(2,3)은 F-104 전투기의 노즈돔(nosedome) 및 롱저론(longeron)을 보론섬유/에폭시와 탄소섬유/에폭시 복합재 패치로 보수하는 논문을 발표하였으며 Chester 등⁽⁴⁾은 F-111 전투기에 있어 큰 균열(약 47mm)이 발생한 하단 날개 외피를 보론섬유/에폭시 복합재 패치로 보수하는 논문을 발표하였다. 또한 Schubbe과 Mall^(5,6)은 균열이 발생한 두께가 큰 알루미늄 판(2024-T3)을 복합재 패치로 보수하여 피로시험을 수행한 바 복합재 패치로 보수하면 피로수명이 4-5배 이상 증가한다는 것을 발표한 바 있다. 그러나 복합재 패치를 적용한 보수 기술의 문제점 중의 하나는 복합재 패치와 기체 사이의 접착력 약화로 인한 접착분리가 일차적인 원인이 되어 항공기의 내구성을 떨어뜨리는 것이다. 특

히 일단 패치와 기체 사이에 접착분리가 발생하면 접착분리는 상당히 빠르게 진행돼 리벳이음을 한 경우보다 더 안 좋은 결과를 야기할 수 있다.

현재 복합재 패치와 알루미늄 계면간의 접착력을 향상시키기 위해 적용하고 있는 표면처리는 크게 표면세정과 silane 처리로 이루어지고 있다. 즉 세제로 표면을 세척하거나 애칭 세정함으로서 표면 오염물을 제거하며 또한 grit blasting으로 표면을 활성화시킨다. 그 후 표면을 silane 처리하며 또한 촉매제(primer)를 접착제 이전에 바른다.⁽⁷⁾ 그러나 이와 같은 방법의 효율성은 크게 입증되지 못한 상태이다.

본 논문에서는 탄소섬유/에폭시 복합재(CFRP)와 알루미늄을 접착제로 접합할 경우, DC 플라즈마를 적용한 알루미늄의 표면처리가 CFRP/알루미늄 일체 구조물의 전단강도 및 T-peel 강도에 미치는 영향에 대해 다루었다. DC 플라즈마를 적용한 알루미늄의 표면처리에 있어 최적의 아세틸렌 가스 대 질소가스 혼합비율과 합성시간을 결정하기 위해 가스 혼합비율과 합성시간의 함수로서 접촉각 및 T-Peel 강도를 측정하였으며, 또한 페인트를 이용한 Peel 강도 등을 측정하였다.

2. 실험 방법

2.1 DC Plasma에 의한 알루미늄 패널 표면처리

본 연구에 사용된 알루미늄 패널은 Al5052 H34-2T로 DC 플라즈마를 이용 고분자 합성을 통하여 표면처리를 수행하였다. 표면처리를 위해 알루미늄 판을 $100 \times 20 \times 2 \text{ mm}^3$ 의 크기로 절단하였으며 표면의 압연유와 기타 유기물을 세척하기 위해 아세톤에 10 분간 초음파로 표면을 세척하였다. 그 후 에탄올과 삼차 증류수를 사용하여 각각 5 분간 초음파로 표면을 세정한 후 고순도 질소(N_2) 가스를 이용하여 시험편의 표면에 잔류하는 용액을 제거하였다. 플라즈마 형성의 원료 기체로는 아세틸렌 (C_2H_2)과 질소 (N_2)의 혼합기체를 사용하였다. 플라즈마 고분자 합성시 최적의 혼합기체 비율을 결정하기 위해 고분자 막 합성시간을 30초로 고정한 후 아세틸렌 대 질소가스 혼합 비율을 1:9, 3:7, 5:5, 7:3, 9:1로 변화시켜 표면처리 하였다. 고분자 합성반응을 일으킬 때의 진공압력은 1×10^{-5} Torr, 파워는 200W, anode

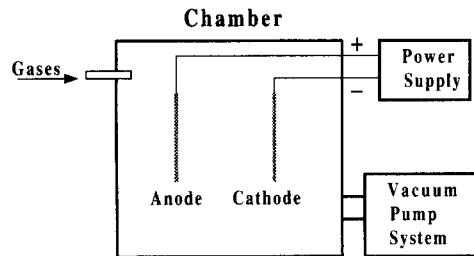


Fig. 1 Schematic diagram for a DC plasma polymerization

와 cathode 사이의 거리는 10cm로 하였으며 알루미늄 자체가 전류가 흐를 수 있게 anode에 연결시키고 전류는 100mA, 전압은 800 ~ 820 V를 합성시간 동안 유지하였다. 플라즈마 합성장치 내부로의 원료기체는 질량흐름제어기(Mass Flow Controller, MFC Sierra Inc., USA)를 이용하여 공급하였다. Fig. 1은 플라즈마 표면처리 장치에 대한 개략도를 나타낸다.

2.2 탄소섬유/에폭시 복합재 성형

본 연구에서는 (주)SK 케미칼에서 생산하는 탄소섬유/에폭시 프리프레그(USN 150B)를 사용 복합재를 성형하였다. 복합재 성형은 프리프레그를 $100 \times 100 \text{ mm}^2$ 크기로 절단한 후 이를 0° 단일방향으로 14 블레이저 적층하였다. 성형은 오토클레이브(autoclave) 내에서 (주)SK 케미칼에서 제시하는 성형방법에 따라 열과 압력을 가함으로써 완성하였다. 성형이 끝난 복합재 시편의 두께는 약 2mm이며 표면의 오염물을 제거하기 위해 다 알루미늄 경우처럼 아세톤에 10 분간 초음파로 표면을 세척하였다. 그 후 에탄올과 삼차 증류수를 사용하여 각각 5 분간 초음파로 표면을 세정한 후 고순도 질소(N_2) 가스를 이용하여 시험편의 표면에 잔류하는 용액을 제거하였다.

3. 결과 및 검토

3.1 최적의 아세틸렌 대 질소가스 혼합 비율 결정

최적의 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율을 결정하기 위해 가스 혼합 비율에 따른 접촉각의 변화를 측정하였다. 접촉각은 액체방울이 고체표면과

더불어 형성하는 각으로서 액체가 고체를 적설 수 있는 정도를 나타내는 젖음성의 척도로 이용된다. 즉 낮은 접촉각은 좋은 젖음성을 나타내는 반면 높은 접촉각은 약한 젖음성을 나타낸다. Fig. 2는 표면처리 하지 않은 알루미늄 경우의 접촉각을 포함, 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율이 1:9, 3:7, 5:5, 7:3, 9:1 경우에 있어 플라즈마 고분자 막 합성시간이 30초로 표면처리 한 알루미늄에 대한 접촉각의 변화를 보여준다. 고분자 막 합성시간을 30초로 한 이유는 표면처리 시간을 10초, 20초, 30초, 40초, 50초, 60초로 하였을 때 30초인 경우가 가장 낮은 접촉각을 나타내기 때문이다.⁽⁸⁾

그럼에 나타나 있듯이 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율에 따라 접촉각이 영향을 받음을 알 수 있다. 또한 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율에 따라 접촉각은 작아졌다 커졌다하는 지그재그 형태의 변화를 나타내지만 혼합 비율이 5:5에서 접촉각이 가장 낮게 나타나는 것을 알 수 있다. 표면처리에 따른 접촉각의 감소는 표면세척에 의한 표면의 유기물질의 제거와 친수성 그룹의 형성에 기인한다.⁽⁹⁾

본 연구 경우 알루미늄 판 자체 표면이 거칠기 때문에 접촉각 만으로는 최적의 가스 혼합 비율을 결정하는데 다소 무리가 있어 스카치 테이프 (scotch tape)를 이용 T-peel 시험을 수행하였으며 이로부터 가스 혼합 비율에 따른 T-peel 강도를 비교하였다. 또한 페인트를 이용한 스카치 테이프 peel 시험을 통해 peel 강도를 비교하였다. T-peel 시험은 ASTM D1876-95⁽¹⁰⁾에 준하여 시행하였다. 실험은 만능 재료 시험기(SHIMADZU AGS-100G)를 사용하여 변위 조정을 통한 일정 변형률(4mm/min) 하에서 실행하였다. Fig. 3은 시험에 사용된 시험편을 나타낸다.

Fig. 4는 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율이 1:9, 3:7, 5:5, 7:3, 9:1로 표면처리 한 알루미늄 판에 대해 스카치 테이프를 이용 T-peel 시험을 수행한 결과를 보여준다. 그럼에 나타나 있듯이 아세틸렌 대 질소가스 혼합 비율에 의해 T-peel 강도가 영향을 받음을 알 수 있다. 표면처리를 안 한 경우의 T-peel 강도가 최소(2N)가 되며 아세틸렌 대 질소가스 혼합 비율을 5:5로 한 경우가 T-peel 강도가 최대(14N)가 됨을 알 수 있다.

페인트를 이용한 peel 시험은 접착부에 대한 접

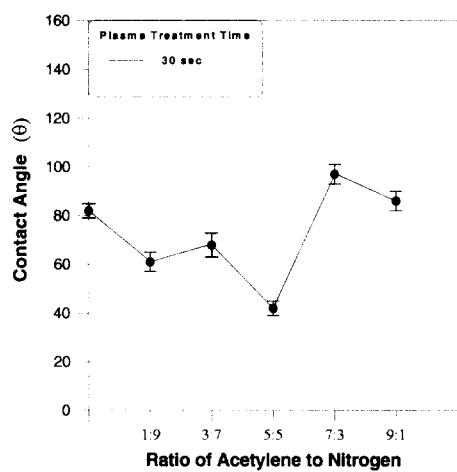


Fig. 2 Variation of contact angle as a function of mixture ratio of acetylene gas to nitrogen gas

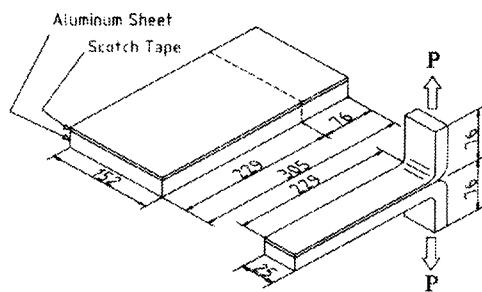


Fig. 3 Configuration of scotch tape T-peel test specimen

착력을 상대 비교하는 실험으로 알루미늄 판에 paint를 칠하고 완전히 건조시킨 후 그 위에 1mm의 격자를 100개 내어서 scotch tape peel test를 수행하였으며 이로부터 남은 격자의 수와 계면상태를 비교하였다. 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율을 1:9, 3:7, 5:5, 7:3, 9:1 경우로 표면처리 한 알루미늄 판에 대해 페인트를 이용한 peel 시험 결과는 Fig. 5에 나타나 있다. Fig. 5에서 "bare" 시편은 표면처리 하지 않은 시편의 실험 결과를 나타낸다. 그럼에서 알 수 있듯이 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율이 5:5인 경우가 가장 좋은 접착력을 나타내는 것을 알 수 있다. 이상 세 가지

실험 결과를 검토하였을 때 알루미늄에 대한 DC 플라즈마 고분자 막 합성은 아세틸렌과 질소가스 혼합 비율이 5:5인 경우가 최적의 혼합 비율로 판단된다.

3.2 전단강도 및 T-peel 강도

본 연구에서는 ASTM D906-94a⁽¹⁾와 ASTM D1876-95에 준하여 전단시험 및 T-peel 시험을 수행하였다. 시편은 0° 단일방향 14 플라이로 성형된 탄소섬유/에폭시 복합재를 섬유방향과 알루미늄의 압연방향이 일치하게 적층한 후 접착제를 이용하여 핫 프레스 (hot press) 내에서 5kg/cm²의 일정 압력으로 상온에서 24시간 경화하여 접착시키는 이차경화법을 적용 제작하였다. 접착제는

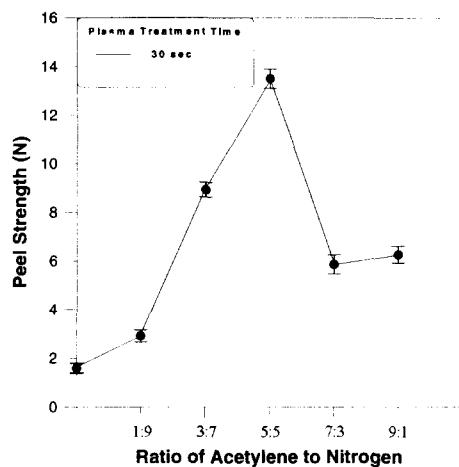


Fig. 4 Change of T-peel strength as a function of mixture ratio of acetylene gas to nitrogen gas

열경화성 에폭시 수지(Epoxy Resin)인 비스페놀 A형 디글리시딜 에테르(Diglycidyl Ether of Bisphenol A-DGEBA, YD-115, (주)국도화학)와 경화제로 디아닐렌(Dianiline, D-230, (주)국도화학)을 중량비 4:1의 수지 혼합비로 사용하였다.

알루미늄 표면처리 유무에 따른 전단강도 및 T-peel 강도 특성을 검토하기 위해 첫 번째 경우는 최적의 표면처리 조건(아세틸렌 대 질소가스 혼합 비율 5:5)으로 표면처리 된 알루미늄을 적용 시편을 제작하였고 두 번째 경우는 표면처리 하지 않은 알루미늄을 적용해 시편을 제작하였다.

SLS 시편의 경우 하중선이 일치하지 않아 겹친(overlap)부위에 모멘트가 발생한다. 따라서 모멘트를 제거하고 겹친 부위에 대한 순수 전단력을 구하기 위해 알루미늄 및 복합재 두께와 동일한 2mm의 텁을 에폭시를 이용하여 알루미늄과 복합재에 부착하였다. Fig. 6과 Fig. 7은 실험에 적용한 SLS 시편과 T-peel 시편을 나타낸다.

Fig. 8은 SLS 시편 시험시 두 경우의 시편에 대한 전형적인 하중-변위 선도를 나타낸다. 그림에 알 수 있듯이 두 경우 모두 같은 유형의 하중-변위 선도를 나타낸다. 즉 변위 초기에는 하중이 급격히 증가하다가 변위가 더욱 증가하면 완만한 비선형을 이루는 구간을 거쳐 파괴되기 전까지 한동안 하중이 유지된다. Fig. 9는 두 경우 시편에 대해 각각 네 번의 실험을 통해 평균을 구한 전단강도를 나타낸다. 전단강도는 텁에 의해 최소한의 모멘트를 제거하였으므로 다음의 식을 이용해 결정하였다.

$$\tau = \frac{P_{cr}}{A} \quad (1)$$

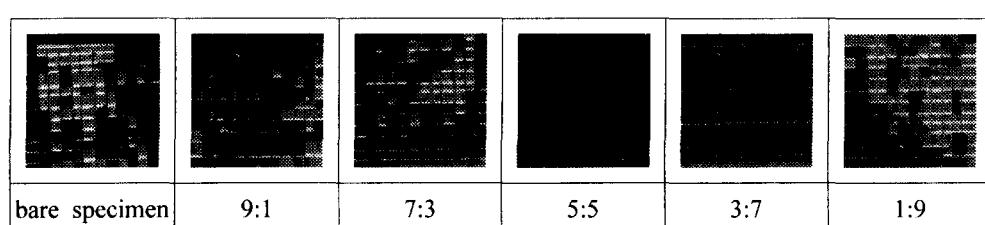


Fig. 5 Results of T-peel test by paints

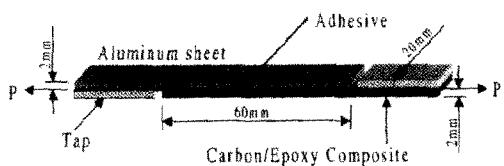


Fig. 6 Schematic diagram of single lap shear specimen

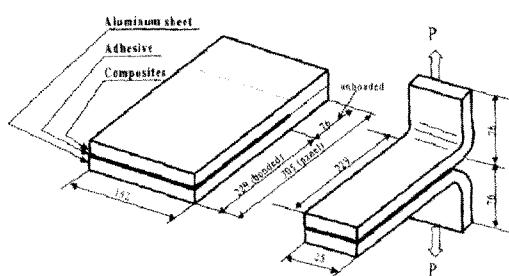


Fig. 7 Schematic diagrams of T-peel specimen

윗 식에서 τ 는 전단강도를, P_{cr} 은 임계하중을, A 는 접착면의 면적을 나타낸다. 임계하중 P_{cr} 값은 하중-변위 선도에서 최대하중 값으로 결정하였다. 그럼에 나타나 있듯이 알루미늄을 표면처리한 시편의 경우 평균 전단강도는 0.48MPa이며 표면처리하지 않은 시편의 평균 전단강도는 0.36MPa이다. 즉 최적의 표면처리 조건을 적용 알루미늄을 플라즈마로 표면처리 하였을 때 CFRP/알루미늄 복합재의 전단강도는 표면처리 하지 않은 경우에 비해 약 34% 정도 증가함을 알 수 있다.

Fig. 10은 T-peel 시험시 두 경우의 시편에 대한 천형적인 하중-변위 선도를 나타낸다. 그림에 나타나 있듯이 "Case 1" 시편 경우가 "Case 2" 시편 경우보다 초기 변위에 대하여 하중이 상당히 높은 것을 알 수 있다.

Fig. 11은 두 경우 시편에 대해 각각 네 번의 실험을 통해 평균을 구한 T-peel 강도를 비교한 그림으로, 알루미늄을 표면처리한 시편의 평균 peel 강도는 표면처리하지 않은 시편의 평균 peel 강도보다 약 5.5배 이상으로 전단강도 보다 현저히 증가된 것을 알 수 있다. 이러한 결과는 알루미늄에 대한 플라즈마 표면처리가 재료표면을 일

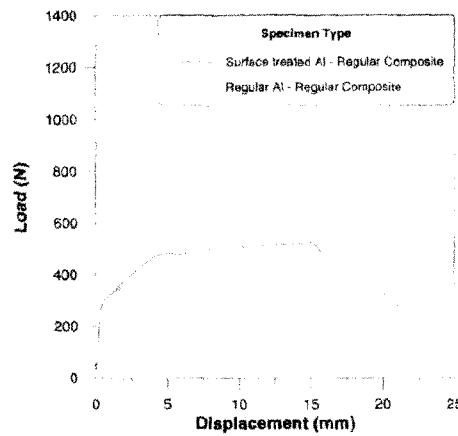


Fig. 8 Load-displacement curves of SLS test for surface-treated and untreated aluminum/CFRP composites

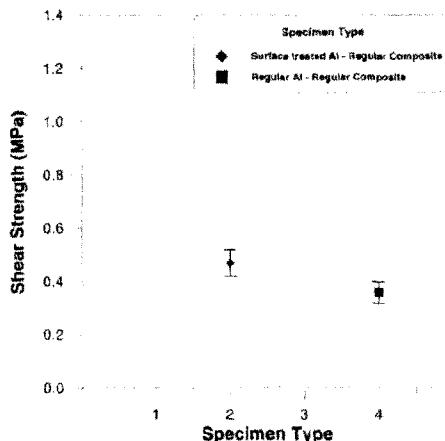


Fig. 9 Shear strength of surface-treated and untreated aluminum/CFRP composites

차적으로 세척해 주고 친수성 기능그룹의 형성으로 예폭시 고분자가 접착계면에서 확산을 이루기 때문으로 사료된다.

4. 결 론

본 연구에서는 플라즈마를 적용 알루미늄 패널을 표면처리 할 때, 접촉각 및 T-peel 강도를 바탕으로 최적의 혼합 가스 비율(아세틸렌:질소가스)을 결정하였다. 또한 DC 플라즈마를

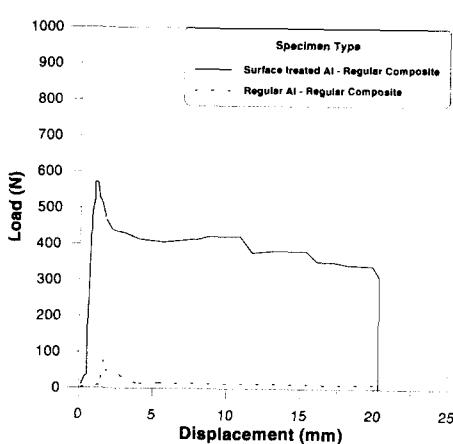


Fig. 10 Load-displacement curves of T-peel test for surface-treated and untreated aluminum/CFRP composites

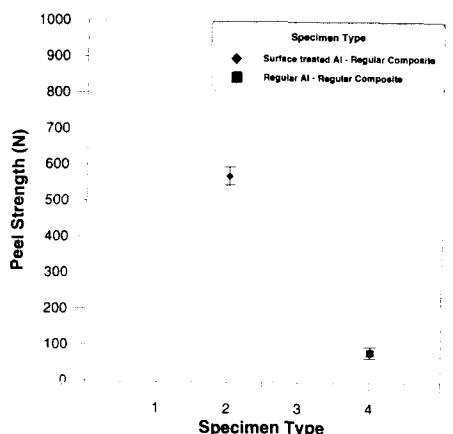


Fig. 11 T-peel strength of surface-treated and untreated aluminum/CFRP composites

알루미늄의 표면처리가 알루미늄/CFRP 일체 구조물의 전단강도 및 T-peel 강도에 미치는 영향에 대해 다루었다. 본 연구를 통해 얻어진 결론은 다음과 같다.

(1) DC 플라즈마를 적용한 알루미늄의 표면처리시 최적의 아세틸렌 가스 대 질소가스 혼합비율은 5:5이다.

(2) 최적의 조건으로 알루미늄을 표면처리 할 경우 전단강도는 약 34% 증가하며 T-peel 강도는 5.5배 이상 증가한다. 이는 플라즈마 표면처리가 표면에서 친수성 기능그룹을 형성해 에폭시 고분

자가 접착계면에서 확산을 이루는데 기인한다.

후기

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구과제 (과제번호 : 2000-1-30400-004-3)에 의하여 연구되었으며 이에 사의를 표합니다.

참고문헌

- (1) Baker, A.A., 1987, "Fiber Composite Repair of Cracked Metallic Aircraft Components," *Composite*, Vol. 18, pp. 293~308.
- (2) Ong, C.L., and Shen, S.B., 1990, "Some Results on Metal and Composite Patch Reinforcement of Aluminum Honeycomb Panel," *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, Vol. 14, pp. 145~153.
- (3) Ong, C.L., and Shen, S.B., 1991, "Repair of F-104 Aircraft Nosedome by Composite Patching," *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, Vol. 15, pp. 75~83.
- (4) Chester, R.J., Walker, K.F. and Chalkley, P.D., 1999, "Adhesively Bonded Repairs to Primary Aircraft Structure," *International J. of Adhesion and Adhesives*, Vol. 19, pp. 1~8.
- (5) Denney J.J. and Mall S., 1997, "Characterization of Disbond Effects on Fatigue Crack Growth Behavior in Aluminum Plate with Bonded Composite Patch," *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 57, pp. 507~525.
- (6) Schubbe, J.J. and Mall, S., 1999, "Investigation of a Cracked Thick Aluminum Panel Repaired with a Bonded Composite Patch," *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 63, pp. 305~323.
- (7) Baker, A.A., 1999, "Bonded Composite Repair of Fatigue-Cracked Primary Aircraft Structure," *Composite Structures*, Vol. 47, pp. 431~443.
- (8) 이경업, 강용태, 양준호, 2001, "에너지 구조재 적용을 위한 알루미늄/섬유강화 복합재의 표면처리," *한국표면공학회지*, 제34권 제1호 pp. 56~61.
- (9) Koh, S. K. Kim, K. H. Kang, B. H. Ha, S. C., 1999, "New Surface Layer Formation by Ion

- Assisted Reaction (IAR) and Optimum Plasma Zone (OPZ)," *Mitigation of Heat Exchanger Fouling and Its Economic and Environmental Problems*, Banff, Canada. July pp. 11~16.
- (10) ASTM D1876-95, "Standard test method for peel resistance of adhesive (T-Peel Test)," *ASTM Standards*, Vol. 15.06, pp. 107~109.
- (11) ASTM D906-94a, "Standard Test Method for Strength Properties of Adhesives in Plywood Type Construction in Shear by Tension Loading," *ASTM Standards*, Vol. 15.06, pp. 25~28.