



<연구논문>

ISSN 1225-8024(Print)
ISSN 2288-8403(Online)

한국표면공학회지
J. Korean Inst. Surf. Eng.
Vol. 49, No. 6, 2016.

<https://doi.org/10.5695/JKISE.2016.49.6.549>

기계적/전기화학적 표면처리가 알루미늄-에폭시의 접합강도 향상에 미치는 영향

정원섭*, 김도형
부산대학교 재료공학과

Effect of Mechanical and Electrochemical Surface Treatments on Aluminium-Epoxy Adhesive Strength

Won-Sub Chung*, Do-Hyung Kim

Departments of Materials Science and Engineering, Pusan National University, Busan 609-735, Korea

(Received December 15, 2016 ; revised December 29, 2016 ; accepted December 30, 2016)

Abstracts

Low melting metals are difficult to weld because it is vaporized. But epoxy resin make bonding possible using low melting material and dismissal materials. This study is to improve the bonding strength of epoxy and substrate by mechanical and electrochemical methods. In case of mechanical work, bonding strength is 17.6MPa and in case of pre-work, bonding strength is 15.3MPa. When anodizing and mechanical work is applied, bonding strength is 25.3Mpa is increased 165%. When anodizing is applied, bonding strength is 27.6Mpa.

Keywords : Adhesive bonding, Adhesive strength, Aluminum, Epoxy resin, Surface treatment

1. 서 론

알루미늄과 그 합금은 각종 전자 및 기계 부품의 발전과 함께 그 수요가 계속적으로 증가하는 추세에 있으나, 높은 산화력으로 인해 기계적, 화학적 및 전기화학적 특성이 취약할 뿐 아니라 낮은 용점(660.2°C)을 가지므로 탄소강 또는 특수강 등과 같은 이종소재와의 용접에 의한 접합에 어려움을 가진다. 이를 해결하기 위한 Adhesive bonding 기술은 알루미늄/알루미늄 합금 등과 같이 용접에 의한 접합이 어려운 소재/부품들을 고강도의 고분자 수지들을 이용하여 동종 및 이종소재와 접합하는 것

을 말한다[1-2]. Adhesive bonding 기술은 철/비철, 금속/세라믹, 금속/플라스틱 등 소재의 구분 없이 접합이 가능할 뿐 아니라, 접합에 사용되는 고분자 수지가 전기적으로 절연성을 가지므로 소재간의 전기적 접촉을 차단하고자 하는 부품 소재들 간의 접합에 많이 적용되고 있다. 또한, 항공기 및 수송기기 알루미늄 합금 등의 경량금속부품과 고강도의 철강부품 사이의 조립에 adhesive bonding 기술이 적용되어 제품의 경량화 및 공정 축소에 의한 경제적인 효과 창출에 기여하고 있다.

특히 전자소재로 사용되는 Metal core printed circuit boards(MCPCBs)는 알루미늄 모재와 절연층 및 구리 전도층으로 구성되어 있는데, 절연층은 알루미늄 모재와 구리 전도층을 전기적으로 분리시켜야 할 뿐 아니라 고강도의 접합능력이 요구되어진다[3-5]. 절연층에 사용되는 에폭시는 알루미늄과 adhesive bonding 기술에 의해 접합되어진다. 알루

*Corresponding Author : Won-Sub Chung
Departments of Materials Science and Engineering, Pusan National University
Tel : +82-51-510-1446 ; Fax : +82-51-514-4457
E-mail : wschung1@pusan.ac.kr

미늄과 고분자 수지인 에폭시는 mechanical interlocking에 의해서 결합되고, 접합강도는 사용되는 에폭시의 종류 및 작업조건에 따라 다르게 되며 모재인 알루미늄의 표면상태가 접합강도에 가장 큰 영향을 미친다. 알루미늄 및 그 합금의 경우 기계적인 표면처리에 의해 쉽게 표면 상태를 바꿀 수 있을 뿐 아니라[16], 전기화학적 양극산화법을 통해 표면 위에 모재와 밀착력이 높은 다공성의 산화피막을 형성시킬 수 있다. 이 때 알루미늄 표면에 형성된 기공의 크기 및 기공간의 거리는 전해액 조성, 인가전류/전압, 전해액 온도 등의 실험 조건에 의해 조절되어진다[6-11].

그러나 알루미늄과 에폭시 사이의 adhesive bonding에서 알루미늄의 전기화학적 표면개질 및 형상 제어와 기계적인 표면처리의 혼합 적용에 대한 연구결과에 대해선 보고되지 않은 실정이다. 따라서 본 연구에서는 여러 기계적인 표면처리 방법과 전기화학적 양극산화법을 단독 또는 혼합 적용하여 알루미늄의 표면개질과 형상제어가 접합강도에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험방법

2.1. 알루미늄 기계적 표면처리

알루미늄과 에폭시 사이의 접합강도 향상을 위하여 기계적인 표면처리를 실시한 알루미늄 샘플을 제조하였다. 알루미늄 시편은 접합강도 측정을 위한 규격(ASTM D3165)에 따라 20 mm × 100 mm × 3 mm(t)로 절단하여 준비하였다. 표면의 이물질 및 산화막 등을 제거하고 표면 활성화를 위하여 5 wt% NaOH 수용액에 알루미늄 시편을 침지하여 60초간 알칼리 탈지를 실시한 후 15 wt% HNO₃ 수용액에서 10초간 De-smut 작업을 실시해 주었다. 알루미늄의 기계적인 표면처리에는 균일하고 작은 요철을 효과적으로 만들어내기 위하여 표면에 80mesh ball size-7기압 조건에서 sand blasting 처리를 실시한 시편, 큰 요철을 인위적으로 만들어내기 위하여 수동으로 접합면적 20 mm × 20 mm 내에 100회 타공(기공크기 756.9 ± 31.2 μm)을 실시한 시편을 각각 제조하였다.

2.2. 알루미늄 양극산화

알루미늄과 에폭시의 접합강도 향상을 위하여 1차로 기계적인 표면처리에 의해 거시단위의 요철을 만들어낸 샘플들에 대하여 2차로 미시단위의 요철을 만들어내기 위한 양극산화처리를 실시하였다. 알루미늄 양극산화법은 표면에 다공질의 산화피막을

Table 1. Anodization Conditions

Electrolyte	Conditions		
	Temperature	Time	Voltage
10wt% H ₃ PO ₄	20°C	20 min	60~100V

만들어내는 기술로서 전해액 조성, 인가 전류 및 전압, 전해 온도 등의 실험 조건에 따라 기공의 크기 및 기공간의 거리를 조절 할 수 있으며 이에 따라 알루미늄과 에폭시 사이의 결합력에 차이가 발생할 수 있다. 본 실험에서 사용된 인산염 양극산화법은 다른 전해질에 비해 빠른 용해반응으로 adhesive bonding에 적합한 다공질 피막을 빠르게 생성할 수 있으며, 구체적인 실험 조건을 표 1에 나타내었다.

2.3. 알루미늄 표면분석

다양하게 표면처리 된 알루미늄 샘플들의 표면을 광학현미경(OM) 및 주사 전자 현미경(SEM)을 통해 관찰하였다.

2.4. 알루미늄-에폭시 Adhesive bonding 시편제조

Adhesive bonding을 위하여 상용의 YD-128 (Kukdo chemical, Korea)을 에폭시수지로 사용하였다. Adhesive bonding을 위해 코팅된 에폭시수지는 4-slide applicator (1402-80, KIpaE&T, Korea)를 사용하여 그 두께를 모든 샘플들에 대하여 100 μm로 일정하게 유지시켜 주었다. 코팅 후 에폭시 수지가 기계적 또는 전기화학적으로 생성된 요철에 효과적으로 침투되도록 공기 중에서 30분간 건조하였다. 자연건조 후 에폭시 수지의 수분 제거를 위하여 100°C에서 10분간 1차 baking을 실시한 후, 수지의 경화를 위하여 200°C에서 10분간 2차 baking을 실시하였다.

2.5. 접합강도 분석

기계적 표면 처리 및 전기화학적 양극산화법을 단독 또는 혼합 적용한 샘플들과 에폭시 수지 사이의 접합강도를 측정하기 위하여 ASTM D 3165의 규격에 따라 Single Lab Shear Test를 실시하였으며, 접합강도 측정을 위한 시편의 모식도를 그림 1에 나타내었다.

3. 실험결과

3.1. 알루미늄 표면 분석

효과적인 알루미늄 표면처리는 알루미늄 모재와 절연층사이의 접합강도 향상 및 에폭시 절연층에

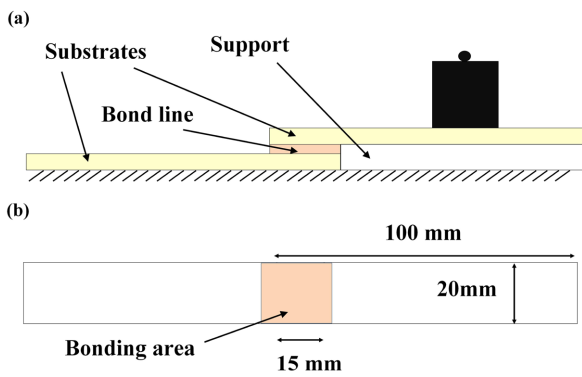


Fig. 1. Single lap shear specimen preparation.

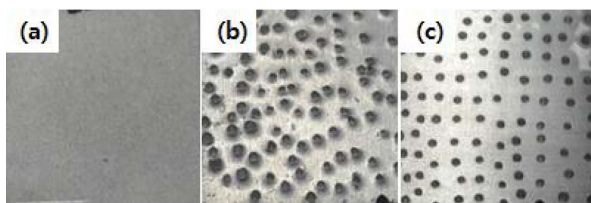


Fig. 2. Mechanical surface treatment on Aluminum, (a) sand blasting, (b) punching, (c) punching and surface grinding.

의한 MCPCBs의 주요 성능을 결정하는 중요한 요인이 된다. 알루미늄과 에폭시 사이의 접합강도는 adhesive bonding에 사용되는 에폭시의 고유 강도 뿐 아니라 표면 상태에 가장 큰 영향을 받게 된다. 즉, 알루미늄과 에폭시사이의 접합은 표면의 mechanical interlocking에 의해서 결합되기 때문에 접합강도는 알루미늄과 에폭시의 계면에서 접촉 면적이 넓을수록 증가하게 된다. 이를 위해 알루미늄 표면에 거시적인 크기의 요철을 만들어주기 위하여 sand blasting 처리 및 기계적인 타공을 실시하였으며 그 표면을 그림 2에 나타내었다.

Sand blasting 처리한 시편의 경우 요철의 크기가 미세하여 육안으로 그 정도를 구분할 수 없으므로, 표면의 요철을 확인하기 위하여 그 단면을 일반적인 알루미늄 시편과 비교하여 그림 3에 나타내었다. Sand blasting 처리에 의한 알루미늄 표면은 금속 알루미늄이 가지는 광택이 나타나지 않고 짙은 회색의 표면을 가지지만 비교적 매끄러운 표면을 가지고 있다. 주사전자현미경으로 관찰한 단면에서 보듯이 sand blasting 처리한 표면이 일반 알루미늄 표면에 비해 불균일하고 거친 표면을 가지고는 있으나, 표면의 거칠기가 두드러지지 않음을 알 수 있다. 타공에 의한 샘플의 경우 타공만 한 그림 2(b) (기공크기 $756.9 \pm 31.2 \mu\text{m}$)의 경우 표면 바깥방향으로의 요철도 함께 생성되어 요철의 높낮이가 편차가 크게 되어 실험결과에 영향을 미칠 수 있으므로 표면 외부를 샌드페이퍼를 이용하여 깊이 방향으로의 요철만 형성된 시편 그림 2(c)(기공크기 $851.3 \pm 23.4 \mu\text{m}$)를 함께 준비하였다.

거시적인 단위의 요철을 기계적인 표면처리에 의해서 형성시킨 후 미세적인 단위의 요철을 추가로 형성하기 위하여 인산염 양극산화법을 실시해 주었으며, 그에 따라 형성된 미세기공을 그림 4에 나타내었다. 선행연구에서 알루미늄 표면에 전해질 종류 및 전압조건에 따라 형성된 미세기공 형성에 따른 접합강도 향상의 연구결과로부터 전해질은 10 wt% H_3PO_4 용액이 선정되었으며, 인가전압은 60 ~ 100 V, 작업시간은 20 min을 선택하여 그 결과를 비교하였다[12].

3.2. 접합강도 분석

상용화되어있는 에폭시 수지인 YD-128과 기계적 및 전기화학적 표면처리를 하지 않은 알루미늄 시

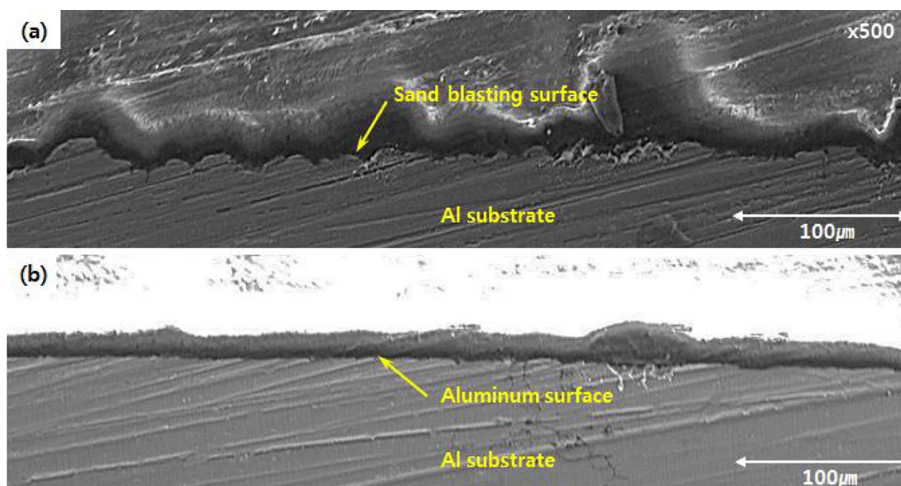


Fig. 3. Cross section surface morphology of Aluminum, (a) Sand blasting surface, (b) Pre-treatment Al surface.

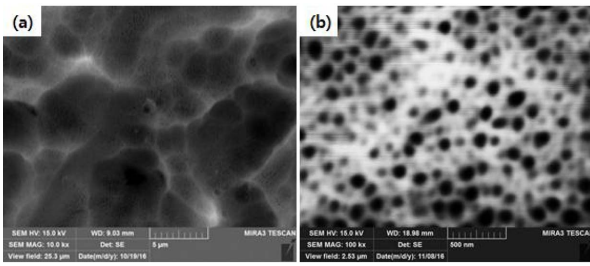


Fig. 4. SEM images of the micro-pore morphology of (a) Sand blasting and anodizing, x 10,000, (b) x 100,000.

편 사이의 접합 강도는 15.3 MPa로 나타난다. 선행의 연구에서는 알루미늄에 양극산화법을 적용하여 기공크기 및 기공률을 제어하여 adhesive bonding 시 고분자 수지와 금속의 결합면적을 증가시켜 접합강도를 향상시켰다. 그 결과를 표 2의 No. 3~5에 나타내었다[12]. 본 연구에서는 알루미늄과 에폭시 사이의 접합강도를 향상시키기 위하여 3.11차적으로 기계적 처리를 실시하여 접합강도 향상을 이루고자 하였고, 2차적으로 전기화학적 양극산화법을 적용하여 접합강도를 더욱 향상시키고자 하였다. 기계적 처리 및 양극산화 단독 또는 혼합 적용한 adhesive bonding의 접합강도를 표 2에 나타내었다. 또한, 접합강도의 변화원인을 파악하기 위하여 샘플 표면이 완전히 분리된 상태의 파단면을 관찰하여 파단면의 형태를 표 2에 함께 나타내었다. 파단면의 형태는 그림 5에 나타나듯이 알루미늄 내에서

Table 2. Adhesive strength on various surface treatments and failure mode

No.	Surface treatment	Adhesive strength	Failure mode
1	-	15.3Mpa	AF
2	Sand Blasting	16.5Mpa	AF
3	P. Anodizing	23.8Mpa	CF
4		26.2Mpa	CF
5		27.6Mpa	AF + CF
6	S.B. + Anodizing	22.8Mpa	AF + CF
7		25.3Mpa	CF
8		20.5Mpa	AF
9	Punching	17.4Mpa	AF
10	Pun. + Anodizing	20.6Mpa	AF
11		20.6Mpa	AF
12		16.0Mpa	AF
13	Pun. + Grindig	17.6Mpa	AF

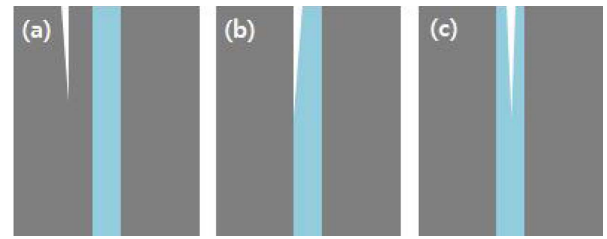


Fig. 5. Failure mechanisms of adhesive bonding, (a) SF, structural failure, (b) AF, adhesive failure, (c) CF, cohesive failure.

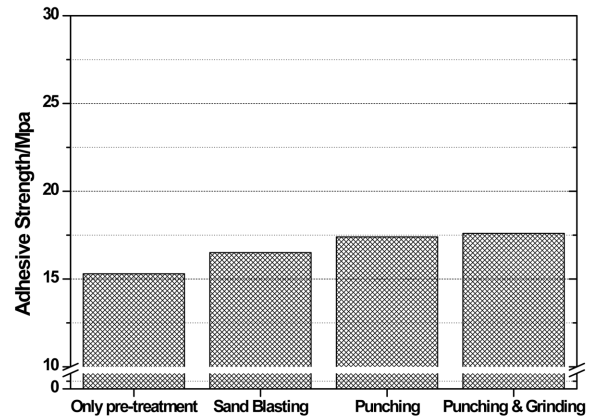


Fig. 6. Change of adhesive strength with various mechanical surface treatments.

파단이 시작된 형태를 Structural Failure, 알루미늄과 에폭시의 계면에서 파단이 시작된 형태를 Adhesive Failure, 에폭시 내부에서 파단이 시작된 형태를 Cohesive Failure로 명칭하고 단독 또는 혼합 형태를 표기하였다[13-15].

표 2의 결과에서 파단면의 형태가 AF일 경우 상대적으로 낮은 15.3 ~ 20.6 MPa의 접합강도를 나타내며, AF + CF 혼합 또는 CF 단독 파단면의 형태를 나타낼 경우 22.8 ~ 27.6 MPa의 높은 접합강도가 나타남을 알 수 있다. 즉, 알루미늄과 에폭시의 계면에서 낮은 접합강도를 나타내는 경우 계면에서 먼저 크랙이 발생하여 성장하고 파단에 이르는 AF 형태를 나타내고, 높은 접합강도를 나타내는 경우 에폭시 내부에서 크랙이 발생하여 성장하고 파단에 이르는 CF 형태를 나타내는 것이라고 할 수 있다. CF 파단 형태의 경우 계면에서의 접합강도가 에폭시 수지 자체가 가지는 고유의 결합강도보다 높게 되므로 에폭시 내부에서부터 크랙이 생성됨을 알 수 있다.

알루미늄 표면의 기계적인 표면처리를 통하여 표면적 확대를 통한 접합강도 향상을 유도하였으며, 그 결과를 그림 6에 나타내었다. 알루미늄 표면에 sand blasting 처리를 실시 한 경우 그림 3에서 보

여지듯이 일반 알루미늄 표면에 비하여 불균일하고 거친 표면을 보이지만, 그 거칠기가 두드러지지 않기 때문에 접합강도 측정결과에서도 별다른 차이를 나타내지 않고 있다. 알루미늄 표면에 수동으로 타공을 실시한 경우에서도 마찬가지로 접합강도의 향상은 크게 나타나지 않는다. 타공을 실시한 경우 실제 표면적은 전처리만 실시한 샘플의 경우보다 향상되었으므로 접합강도가 높게 나타날 수 있을 것이라 예상 되었지만, 실제로는 타공 주위에 형성된 틈 부분에서 응력집중 현상이 일어나 크랙이 우선적으로 발생 및 성장하여 표면적 확대에 의한 접합강도 향상의 효과가 나타나지 않은 것으로 판단할 수 있다.

알루미늄의 기계적인 표면처리와 전기화학적인 양극산화법을 단독 또는 혼합 적용하여 알루미늄과 에폭시 수지 사이의 접합강도를 측정한 결과를 그림 7에 나타내었다. 20°C, 10 wt% H₃PO₄ 용액에서 60~100 V의 인가전압으로 20분간 양극산화를 실시하여주면 알루미늄 표면에 약 90~150 nm 수준의 미세기공들이 형성 된다. 선행연구결과로부터 미세기공들의 크기 및 기공률에 따른 접합강도의 향상을 확인하였으며[12], 본 연구에서는 기계적 표면처리와 혼합 적용하여 그 결과를 확인하였다. 그 결과, 기계적인 표면처리를 실시한 후 추가로 양극산화법을 적용한 샘플들에 대하여 양극산화법을 단독 적용한 경우보다 오히려 접합강도가 하락함을 알 수 있다. 양극산화법을 단독 적용한 경우 인가전압 60 V, 80 V, 100 V에 따라 각각 23.8 MPa, 26.2 MPa, 27.6 MPa의 접합강도를 나타내지만, 타공과 양극산화법을 혼합 적용한 경우 20.6 MPa, 20.6 MPa, 16.0 MPa의 접합강도를 나타낸다. 이는 양극산화에 의해 형성된 미세기공들에 의한 표면적 증가의 효과는 같지만, 거시적인 단위의 불균일한 표면과 에폭시 계면사이에서 응력집중이 우선적으로 이루어져 크랙이 발생 및 성장하여 먼저 파단에 이르는 것으로 판단할 수 있다. Sand blasting 처리와 양극산화법을 혼합 적용한 경우 비교적 양극산화법을 단독 적용한 경우와 비슷한 수준의 접합강도를 보이고 있으며, 타공과 양극산화법을 혼합 적용한 경우에는 단순 전처리한 시편의 경우와 비슷한 접합강도를 나타내는 경우도 발생한다.

4. 결 론

본 연구에서는 전자소재로 사용되는 MCPCBs에서 절연층으로 사용되는 에폭시와 알루미늄 기재 사이의 접합강도를 알루미늄의 표면처리 방법에 따

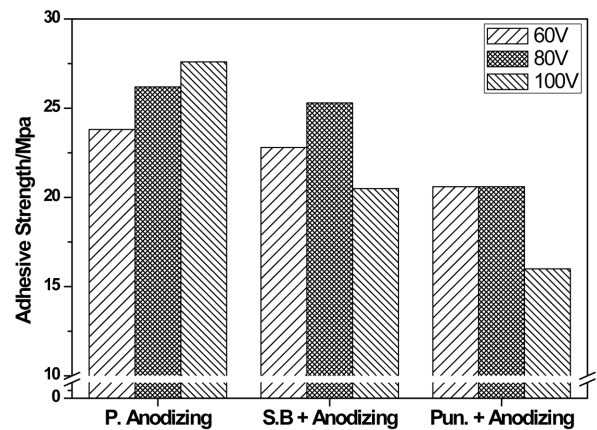


Fig. 7. Change of adhesive strength with mechanical and electrochemical surface treatments.

라 측정하고 그 결과를 정리하였다. Sand blasting 처리와 수동 타공과 같은 기계적인 표면처리와 인산염 전해질을 통한 양극산화법을 단독 또는 혼합 적용하여 알루미늄과 에폭시 사이의 접합강도를 측정하고 그 상관관계를 파악하였다. 알루미늄과 실험에 사용된 에폭시 수지 사이의 접합강도는 15.3 MPa로 측정되었으며, 기계적인 표면처리에 의해 접합강도는 17.6 MPa까지 증가하였다. 알루미늄의 기계적인 표면처리에 의해 실제 표면적이 증가하는 상승요인과, 거시적인 단위의 요철 주위에서 응력 집중이 일어남에 의한 크랙 발생의 하락요인이 복합적으로 작용하여 알루미늄과 에폭시 계면 사이의 접합강도의 두드러진 향상은 나타나지 않는다. 양극산화법을 적용한 경우 90~150 nm 수준의 무수히 많은 기공들에 의하여 실제 표면적이 매우 크게 증가하므로 접합강도가 크게 향상 된다. 인산염 양극산화법을 단독 적용한 경우 접합강도가 27.6 MPa, 약 1.8배 증가하였다. 기계적인 표면처리와 양극산화법을 혼합 적용한 경우 접합강도는 16.0~25.3 MPa로 단독 적용한 경우보다 하락한 결과를 나타낸다. 본 연구에서는 알루미늄의 기계적인 표면처리에 의한 표면개질이 알루미늄과 에폭시 사이의 계면에서 접합강도에 불리하게 적용하였다. 그러나 미시적인 단위의 표면개질에 의한 접합강도 향상을 동시에 확인할 수 있었으며, 기계적인 표면처리법을 개선하여 적용하면 보다 효과적인 접합강도 향상 방안을 도출할 수 있을 것으로 판단된다.

후 기

이 논문은 부산대학교 자유 과제 학술연구비(2년)에 의하여 수행되었기에 이에 감사를 드립니다.

References

- [1] Jun Hee Song and Jae Kyoo Lim, Bonding Strength in Structural Adhesive Bonded Joint, *Met. Mater. Int.* 7 (2001) 467-470.
- [2] Youngsik Kim and Sangcheol Kim, Latest Joining Technology of Metal and Plastics, *J. Welding and Joining* 34 (2016) 31-39J.-S.
- [3] E. Juntunen, A. Sitomaniemi, O. Tapaninen, R. Persons, M. Challingsworth, and V. Heikkinen, Thermal Performance Comparison of Thick-Film Insulated Aluminum Substrate With Metal Core PCBs for High-Power LED Modules, *IEET. T. Compon, Pack. Man.* 2 (2012) 1957-1964.
- [4] E. Juntunen, O. Tapaninem, A. Sitomaniemi, M. Jamsa, V. Heikkinen, M. Karppinen and P. Karioja, Copper-Core MCPCB with Thermal Vias for High-Power COB LED Modules, *IEET. T. Power. Electr.* 29 (2014) 1410-1417.
- [5] W. K. C. Yung, Using Metal Core Printed Circuit Board(MCPCB) as a Solution for Thermal Management, *J. HKPCA. Q2* (2007) 12-16.
- [6] T. P. Hoar and N. F. Mott, A MECHANISM FOR THE FORMATION OF POROUS ANODIC OXIDE FILMS ON ALUMINIUM, *J. Phys. Chem. Solids.* 9 (1959) 97-99.
- [7] S. Mohagheghi, A. Hatefim and A. Kianvash, Effect of H_3PO_4 anodizing variations on Al-epoxy adhesion strength, *Surf. Eng.* 29 (2013) 737-742.
- [8] D. E. Packham, K. Bright, and B. W. Malpass, Mechanical factors in the adhesion of polyethylene to aluminum, *J. Appl. Polym. Sci.* 18 (1974) 3237-3247.
- [9] A. Belwalkar, E. Grasing, W. Van Geertruyden, Z. Huang and W. Z. Misiolek, Effect of Processing Parameters on Pore Structure and Thickness of Anodic Aluminum Oxide (AAO) Tubular Membranes, *J. Membrane. Sci.* 319 (2008) 192-198.
- [10] J. -C. K. Woo Lee, U. Gosele, Spontaneous Current Oscillations during Hard Anodization of Aluminum under potentiostatic Conditions, *Adv. Funct. Mater.* 40 (2010) 21-27.
- [11] L. Zaraska, G. D. Sulka, M. Jaskula, The effect of n-alcohols on porous anodic alumin formed by self-organized two-step anodizing of aluminum in phosphoric acid, *Surf. Coat. Tech.* 204 (2010) 1729-1737.
- [12] S. K. Lee, D. H. Kim, Y. M. Kim, U. C. Jung and W. S. Chung, Effect of Aluminum Anodizing in Phosphoric Acid Electrolyte on Adhesion Strength and Thermal Performance, *Met. Mater. Int.* 22 (2016) 20-25.
- [13] J. -S. Zhang, X. -H. Zhao, Y. Zuo and J. -P. Xiong, The bonding strength and corrosion resistance of aluminum alloy by anodizing treatment in a phosphoric acid modified boric acid/sulfuric acid bath, *Surf. Coat. Tech.* 202 (2008) 3149-3156.
- [14] R. P. Digby and D. E. Packham, Pretreatment of aluminum: topography, surface chemistry and adhesive bond durability, *Int. J. Adhes. Adhes.* 15 (1995) 61-71.
- [15] O. Lunder, B. Olsen and K. Nisancioglu, Pretreatment of AA6060 aluminium alloy for adhesive bonding, *Int. J. Adhes. Adhes.* 22 (2002) 143-150
- [16] S. H. Han, M. Kim, D. Y. Chang and B. H. Rho, Effects of Pretreatment on the Adhesive Bonding of Aluminium Plate, *J. Kor. Inst. Surf. Eng.* 25 (1992) 97-102.