

재활용을 고려한 금속-열가소성 복합재료 하이브리드 접착 구조의 분리 기술 개발

한수호* · 황희윤*[†] · 배민관** · 박상언** · 장홍규***

Development of Separation Technology for Adhesively Bonded Hybrid Structures of Metals and Thermoplastic Composites Considering Recycling

Soo-Ho Han*, Hui-Yun Hwang*[†], Min-Gwan Bae**, Sang-Eon Park**, Hong-Kyu Chang***

ABSTRACT: Multi-material design with metals and composites can keep structural functions as well as reduce the weight of automotive parts. However, recycling of automotive parts should be considered due to the increasing emphasis on the environments and pollutions. We derived the key issues for increasing the recycling rate of automotive parts by carrying out a survey targeting representatives and workers related with automotive recycling. The core of the key issues was the separation technology of adhesively bonded metal-composite hybrid structures, so we conducted the basic research and suggested the separation technology which can easily be adopted into the recycling industries.

초 록: 최근 들어 금속과 복합재료를 혼합하여 자동차 부품을 제작함으로써 구조의 기능성을 만족하면서도 무게를 줄이고자 하는 연구가 진행되고 있다. 환경문제로 인해 전기전자제품 및 자동차의 재활용 규제가 강화되고 있음을 고려하여, 자동차 재활용 업체 관계자의 설문을 통하여 금속과 복합재료 하이브리드 구조의 재활용을 향상을 위한 요소 기술을 도출하였다. 필요한 요소 기술 중 기술적으로 해결할 수 있는 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조의 분리 기술에 대한 기초 연구를 진행하였으며, 재활용 현장에서 쉽게 도입할 수 있는 분리 기법을 제안하였다.

Key Words: 금속(Metals), 복합재료(Composite materials), 접착 구조(Adhesively bonded structures), 재활용(Recycling), 분리 기술(Separation technology)

1. 서 론

최근 들어 중국의 재활용 쓰레기 수입금지 결정으로 인하여 플라스틱 특히 폐비닐의 처리가 심각한 사회 문제로 대두되었다. 환경문제 해결을 위해서 쓰레기 혹은 폐기 제

품의 재활용을 활성화해야 하기 때문에 재활용에 대한 필요성은 지속적으로 증가하고 있으며, 이러한 이유로 많은 국가들이 전기전자제품 및 자동차 등과 같은 제품의 재활용을 법규 혹은 규정을 통하여 규제하고 있으며, 재활용의 기준이 점차 강화되고 있다[1-3]. 오랜 기간의 연구를 통

Received 23 June 2018, received in revised form 1 August 2018, accepted 22 August 2018

*Dept. of Mechanical Design Engineering, Andong National University

[†]Dept. of Mechanical Design Engineering, Andong National University, Corresponding author (E-mail: hyhwang@anu.ac.kr)

**Advanced Technology Team, Sungwoo Hitech Co. Ltd.

***Composite Research Division, Korea Institute of Materials Science

하여 강, 알루미늄과 같은 금속 재료의 재활용은 100%에 가까운 수준에 이르고 있으며, 고분자 소재의 경우도 다양한 방법으로 재활용율을 높이고 있다[4-7].

한편 복합재료는 높은 비강성, 비강도 및 감쇠 특성으로 우주 항공, 자동차, 전기전자 제품 등 다양한 분야에 적용이 확대되고 있다. 따라서 재활용 관련 법규에 따라 전기전자제품 혹은 자동차에 적용된 복합재료의 재활용도 중요성이 높아지고 있다. 지금까지 연구된 재활용 방법은 분쇄 후 입자상 물질 활용, 열분해 및 화학적 섬유 및 고분자 재생 등이 있으며, 유럽 등의 선진국에서는 열분해 및 화학적 기법을 통한 섬유 재생 및 재생 섬유의 활용이 활발히 이루어지고 있다[8-11].

최근 들어 금속, 고분자 및 복합재료의 소재 활용 효율 극대화를 위하여 다소재 구조 설계(Multi-material structure design) 적용이 제안되어 많은 연구가 진행되고 있다[12]. 특히 BMW 7시리즈의 경우 강과 탄소섬유 복합재료를 이용하여 차량 강성 및 충돌 특성을 향상시키면서도 차량 무게를 줄인 대표적인 사례라고 할 수 있다. 다소재 구조의 경우 이종 소재 간의 결합이 반드시 필요하며, 금속과 복합재료는 접착제에 의한 접착과 기계적 결합이 주로 사용된다. 특히 금속-복합재료 하이브리드 구조의 접착 조인트의 경우 소재별 분리가 용이하지 않아 금속 혹은 복합재료 단일 소재의 재활용에 비하여 재활용율의 저하가 예상된다[13-15].

본 논문에서는 각국의 재활용 규정에 근거하여 국내 자동차 산업에서 복합재료의 재활용 현황을 분석하였다. 복합재료의 재활용율 향상을 위해 필요한 요소기술을 도출한 후, 재활용 업체에서 활용할 수 있는 단순한 요소기술에 대해 실험적으로 고찰하였다.

2. 재활용 현황 분석

2.1 재활용 규정 및 현황

재활용 산정은 신차 1대 당 중량에서 차지하는 재사용 혹은 재활용 가능한 질량의 백분율로 표현되는 재활용율(Recycling Rate)과 신차 1대 당 중량에서 차지하는 재사용, 재활용 및 에너지 회수 가능한 질량의 백분율로 표현되는 복구가능율(Recovery Rate)으로 규정되어 있다[16].

주요국의 자동차와 관련된 재활용 관련 규정 및 기준은 Table 1과 같다. 중국을 제외한 대부분의 국가에서 재활용율 85% 이상과 복구가능율 95% 이상을 기준으로 하고 있으며, 미국의 경우 자동차 제조사 연합에서 관련 내용을 협의 및 대응하고 있다.

Fig. 1에서 보듯이 자동차의 재활용은 해체, 파쇄, 선별, 잔재물(ASR, Automotive Shredder Residue) 처리로 진행된다. 해체 단계에서 재사용 가능한 부품 등을 분리하고, 잔류차체 파쇄 후 유가금속을 선별해 내고 나면 합성수지, 유리, 고무 등의 잔재물만 남게 된다. 잔재물은 금속에 비해

Table 1. Laws related with recycling and their lower limits of recycling and recovery rate

Nation	Related Regulation	Regulation Limit
Korea	Act On The Resource Circulation Of Electrical And Electronic Equipment And Vehicles	All vehicles Recycling rate \geq 85% Recovery rate \geq 95%
EU	ELV Directive 2000/53/EC	Passenger cars and small vans Recycling rate \geq 85% Recovery rate \geq 95%
Japan	End-of-Life Vehicle Recycling Law	All vehicles Recycling rate \geq 85% Recovery rate \geq 95%
China	Statute 307 (End-of-Life Vehicle Recycling Regulation)	All vehicles Recovery rate \geq 85%
USA	No regulation	



Fig. 1. Recycling process of disused cars

재활용 가치가 낮으며, 관련 기술 및 처리기반이 미흡기 때문에 재활용율이 상대적으로 낮으며, 대부분 소각 혹은 매립된다[17].

2.2 복합재료 재활용 요소 기술 도출

복합재료를 포함한 합성수지의 재활용 향상을 위한 요소 기술 도출을 위하여, 자동차 재활용 업체 5곳의 대표 및 작업자 설문을 통하여 자동차용 고분자 및 복합재료의 재활용율이 낮은 이유를 분석하였다.

설문은 고분자 혹은 복합재료의 재활용을 제한하는 요소를 자유로이 나열하는 형식으로 진행되었으며, 설문 결과는 응답을 유사한 항목끼리 묶은 후 전체 설문자 중 해당 답변을 제출한 비율로 정리하였다. Fig. 2는 설문 결과 상위 4개 항목과 각 항목의 응답비율을 나타내고 있다. 설문 결과에 따르면 접착에 의한 소재 분리의 어려움, 소재 재활용 가치 부족과 소재 회수 업체의 부족이 주요 원인으로 나타

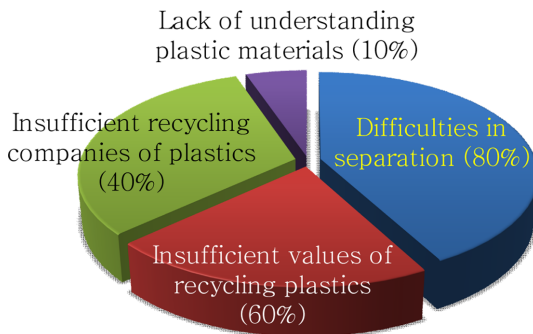


Fig. 2. Cause of the low recycling rate of polymers and composites

났으며, 소재 분리의 어려움으로 인해 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조는 대부분 파쇄 및 소각을 통해 금속 재료만 재활용하고 있는 실정이다. 따라서, 자동차용 복합재료의 재활용을 향상을 위해서는 금속과 복합재료의 접착 조인트 분리가 가장 중요한 요소 기술임을 확인하였다.

3. 금속-복합재료 접착구조 분리 기술

3.1 접착구조 분리 기술 선정

금속과 복합재료 접착 구조의 분리는 기계적, 열적, 화학적 분리와 디본딩 접착제(Debondable adhesives)와 같은 기능성 소재를 활용한 분리로 나눌 수 있다. 기능성 소재를 활용한 분리의 경우 접착구조 분리가 비교적 용이하나, 접착 강도 저하와 접착제 가격 상승과 같은 단점이 있어 재활용만을 위해서 자동차에 적용하기에는 한계가 있다. 기계적, 열적, 화학적 분리의 경우 기존 접착제를 활용하기 때문에 접착 강도 및 접착제 가격 등에 있어서는 문제가 없지만, 상대적으로 높은 접착 강도는 접착 구조 분리에는 불리한 요소이다. 특히 화학적 분리의 경우 사용 후 폐약품의 처리 등의 문제가 있기 때문에 재활용 현장에서 바로 적용하기는 다소 무리가 있을 것으로 판단된다. 따라서, 재활용 현장에서 비교적 쉽게 채용할 수 있는 기계적 분리 기법과 열적 분리 기법을 접착구조 분리 기술로 선정하였다.

3.2 재료 및 방법

기계 및 열적 분리 기법에 관한 기초 연구를 수행하기 위하여 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조의 온도에 따른 접착 강도를 비교하였다.

냉간압연고강도강(SPFC590Y), 알루미늄 7085, 직조형탄소섬유 열가소성 폴리우레탄 복합재료(WCTU-400/50, SK Chemicals), 구조용 에폭시(DP 460)을 이용하였으며, 각 소재의 기계적 물성은 Table 2에 제시하였다.

접착 강도는 재활용 현장에서 접착 구조 분리 형태로 예상되는 Lap shear test(ASTM D5868[18])와 Cleavage peel test (ASTM D3807[19])에 따라 평가하였으며, Fig. 3과 같이

Table 2. Mechanical Properties of adherend materials

Adherend material	SPFC980Y [Steel]	6061-T6 [Aluminum]	WCTU-400/50 [CFRP]
Young's modulus (GPa)	200	69	60
Yield strength (MPa)	490	270	-
Tensile Strength (MPa)	980	310	790
Elongation (%)	18	12	-
Density (kg/m ³)	7860	2700	2020
CTE (μm/m°C)	17	25	-
Glass Transition Temperature (°C)	-	-	115

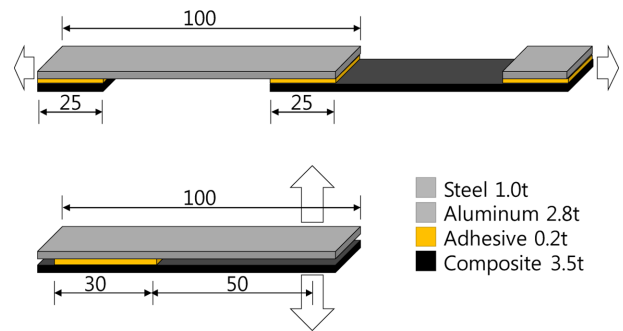


Fig. 3. Dimensions of metal-composite hybrid adhesive joints for (upper) lap shear tests and (lower) cleavage peel tests

접착 폭 및 두께는 각각 25 mm와 0.2 mm를 적용하였다. 접착 조인트 제작은 피접착제의 표면처리, 접착제 도포, 피접착제 결합 및 접착제 경화 순으로 진행하였다. 피접착제의 표면은 사포 처리와 에탄올을 이용한 표면 세척 후 30도 오븐에서 24시간 건조하여 준비하였다[20]. 접착 조인트의 경화는 80도에서 60분 동안 진행되었다.

접착제의 유리전이온도가 77도인 것을 고려하여, 분위기 온도 25, 60, 80, 100도에서 시험편을 20분간 유지 한 후 1 mm/min의 속도로 시험을 진행하였으며, 각 시험의 최대 하중을 기준으로 접착 강도를 계산하였다.

3.3 시험 결과 및 분석

Fig. 4는 분위기 온도에 따른 접착 강도 시험 결과를 나타낸다. 분위기 온도에 따른 Lap shear test와 Cleavage peel test 결과는 유사한 경향을 가졌으며, 유리전이 온도 이전인 60도까지는 접착 강도 변화가 적었지만 유리전이 온도 이후부터는 급격한 접착 강도 저하가 관찰되었다. 특히 100도의, 분위기 온도에서는 초기 접착 강도의 5% 이하 수준을 보이고 있다.

자동차에 적용되는 금속-복합재료 접착 구조를 고려하

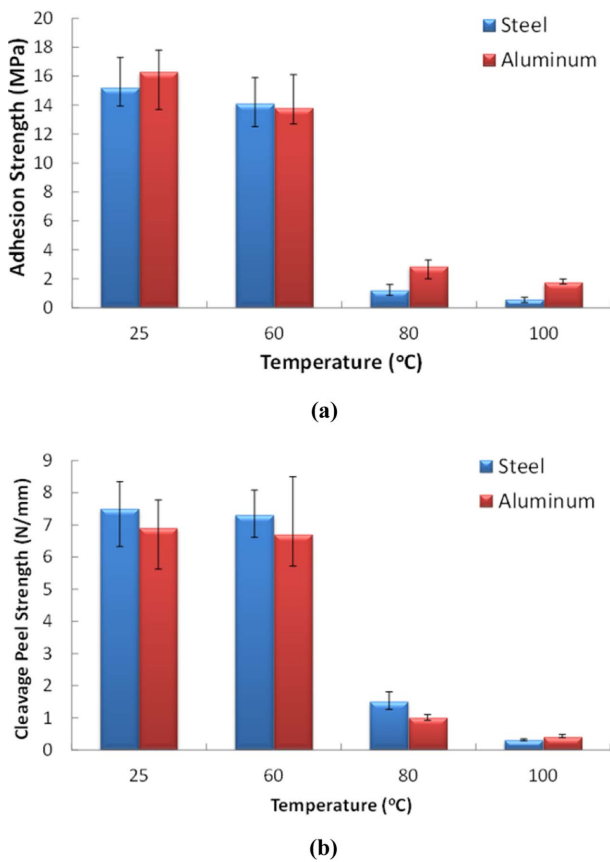


Fig. 4. Measured adhesion strength of metal-composite hybrid adhesive joints with respect to the environmental temperature by (a) lap shear tests and (b) cleavage peel tests

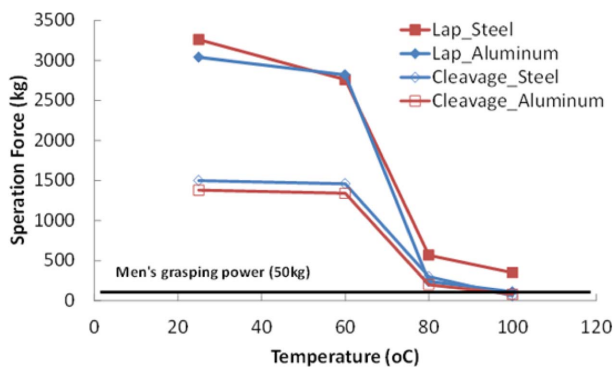


Fig. 5. Required separation forces calculated using measured adhesion strength of Fig. 4 with respect to the environmental temperature

여 접착 면적이 $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$ 인 경우 접착 구조 분리에 필요한 하중을 Fig. 4의 접착 강도를 기준으로 계산하면 Fig. 5과 같은 결과를 얻을 수 있다. 전단으로 분리할 경우 상온에서 약 3톤의 하중이 필요한 반면 100도에서는 200 kg의 하중이면 충분하였으며, 박리 하중의 경우 100도에서 약 50 kg의 하중이 필요하다. 성인 남성이 악력이 50 kg인 것을

감안하면 100도에서 인간의 힘으로 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조의 분리가 가능할 것으로 예측되며, 지렛대와 같은 도구를 이용하면 유리전이 온도 이상에서는 충분히 분리가 가능할 것으로 판단된다.

온도에 따른 접착 강도 시험결과와 이로부터 예상한 분리 하중을 기준으로 보면, 자동차용 금속-복합재료 접착구조를 사용된 접착제의 유리전이 온도 이상으로 가열한 후 사람의 악력 혹은 지렛대와 같은 단순한 도구만을 이용하여 분리가 가능할 것으로 예상되며, 재활용 현장에는 접착구조 가열을 위한 열 챔버(Heat chamber)만 준비하면 되기 때문에 비교적 쉽게 적용이 가능하다고 판단된다.

4. 결론

본 연구에서는 재활용을 고려한 자동차용 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조의 분리 기술 개발에 관한 연구를 수행하였다. 주요 국가의 재활용 관련 법규 혹은 규정에 근거하여 국내 재활용 업체의 설문 조사를 하였으며, 복합재료 재활용을 향상을 위해서는 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조의 분리 기술이 요소 기술로 도출되었다.

온도에 따른 금속-열가소성 탄소섬유 폴리우레탄 복합재료의 접착 강도 변화를 실험을 통하여 구하였으며, 이로부터 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조 분리에 필요한 하중을 계산하였다. 이 때 유리전이 온도 이상에서 접착구조 분리에 필요한 하중은 사람의 악력 혹은 지렛대와 같은 단순한 도구로 충분히 가능한 수준임을 확인하였다. 이로부터, 재활용 현장에서 열 챔버와 같은 비교적 단순한 장비의 추가만으로도 금속-복합재료 하이브리드 접착 구조의 분리가 가능하며, 이를 통하여 복합재료의 재활용을 향상이 가능할 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 산업자원부가 지원하는 산업기술혁신사업(과제번호 10077492)의 지원으로 수행된 것이며, 지원에 대해 진심으로 감사드립니다.

REFERENCES

1. Jung, I.L., Lee, M.Y., Jung, H.W., and Byun, D.Y., *A Study on Enhancing Recycling of Plastics in End-of-Life Vehicles*, Final Report of Korea Automotive Recycles Association, 2010.
2. Park, J.W., Yi, H.C., Park, M.W., and Sohn, Y.T., "A Study on Monitoring System Architecture for Calculation of Practical Recycling Rate of End of Life Vehicle," *Clean Technology*, Vol. 18, No. 4, 2012, pp. 373-378.
3. Jeon, H.S., Lee, H., Lee, K.H., and Baek, S.H., "Present Condition of End-of-Life Vehicles Recycling of Germany by EU-

- COM-Table," *Journal of Korea Society of Waste Management*, Vol. 32, No. 2, 2015, pp. 115-122.
4. Graedel, T.E., Allwood, J., Birat, J.P., Reck, B.K., Sibley, S.F., Sonnemann, G., Buchert, M., and Hagelucken, C., "What Do We Know About Metal Recycling Rates?," *Journal of Industrial Ecology*, Vol. 15, No. 3, 2011, pp. 355-366.
 5. Gaustad, G., Olivetti, E., and Kirchain, R., "Improving Aluminum Recycling: A Survey of Sorting and Impurity Removal Technologies," *Resources, Conservation and Recycling*, Vol. 58, No. 1, 2012, pp. 79-87.
 6. Das, S., "Life Cycle Energy and Environmental Assessment of Aluminum-Intensive Vehicle Design," *SAE International Journal of Materials and Manufacturing*, Vol. 7, No. 3, 2014, pp. 588-595.
 7. Blunck, E., *Germany BMW's Sustainability Strategy of Evolution and Revolution Towards a Circular Economy*, in Anbumozhi, V., and Kim J. (eds.), *Towards a Circular Economy: Corporate Management and Policy Pathways*, ERIA Research Project Report 2014, pp. 75-92.
 8. Palmer, J., Ghita, O.R., Savage, L., and Evans, K.E., "Successful Closed-Loop Recycling of Thermoset Composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 40, No. 4, 2009, pp. 490-498.
 9. Pickering, S.J., "Recycling Technologies for Thermoset Composite Materials-Current Status," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 37, No. 8, 2006, pp. 1206-1215.
 10. Song, Y.S., Youn, J.R., and Gutowski, T.G., "Life Cycle Energy Analysis of Fiber-Reinforced Composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 40, No. 8, 2009, pp. 1257-1265.
 11. Yang, Y., Boom, R., Irion, B., van Heerden, D., Kuiper, P., and de Wit, H., "Recycling of Composite Materials," *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, Vol. 51, No. 1, 2012, pp. 53-68.
 12. DeMorro, C., "Next BMW 7 Series To Get Weight-Saving Carbon Fiber Core," *Clean Technica*, April 22, 2015.
 13. Leijonmarch, S., Cornell, A., Danielsson, C., Akermark, T., Brandner, B.D., and Lindbergh, G., "Electrolytically Assisted Debonding of Adhesives: An Experimental Investigation," *International Journal of Adhesion and Adhesives*, Vol.32, No. 1, 2012, pp. 39-45.
 14. Lu, Y., Broughton, J., and Windfield, P., "A Review of Innovations in Disbonding Techniques for Repair and Recycling of Automotive Vehicles," *International Journal of Adhesion and Adhesives*, Vol.50, No. 1, 2014, pp. 119-127.
 15. Banea, M.D., da Silva, L.F.M., and Carbas, R.J.C., "Debonding on Command of Adhesive Joints for the Automotive Industry," *International Journal of Adhesion and Adhesives*, Vol.59, No. 1, 2015, pp. 14-20.
 16. *Road Vehicles - Recyclability and Recoverability - Calculation Method*, ISO 22628, 2002.
 17. Brian, T., "How to Best Recycle or Handle auto Shredder Residue (ASR) Remains a Subject of Debate and a Topic for Research," *Recycling Today*, May 15, 2012.
 18. *Standard Test Method for Lap Shear Adhesion for Fiber Reinforced Plastic (FRP) Bonding*, ASTM D5868, 2014.
 19. *Standard Test Method for Strength Properties of Adhesives in Cleavage Peel by Tension Loading*, ASTM D3807, 2012.
 20. Kinloch, A.J., *Adhesion and Adhesives: Science and Technology*, Chapman & Hall, London, 1978.