

## 반응성 플라즈마 표면처리기법을 도입한 새로운 유리섬유 강화 복합재료의 개발 및 물성연구(II)

Development of New Glass Fiber Reinforced Composite Insulating Material by Reactive Plasma Surface Treatment(II)

박정후, 조정수, 성열문, 김두환, 김 규섭  
부산대학교 전기공학과

Chung-Hoo Park, Jung-Soo Cho, Youl-Moon Sung, Doo-Hwan Kim, Gyu-Sub Kim  
Pusan National University Electrical Engineering dept.

부산대학교 전기공학과 교수  
부산대학교 전기공학과 교수  
부산대학교 전기공학과 박사과정  
부산대학교 전기공학과 박사과정  
부산대학교 전기공학과 박사과정

### Abstract

One of the principal problems encountered in the use of glass fiber reinforced plastic composites(GFRP) is to establish an active fiber surface to achieve maximum adhesion between resin and fiber surface. In order to develop a new process to overcome the disadvantage of chemical agent, we have studied the effect of reactive plasma glass surface treatment on the electrical and mechanical properties of glass fiber reinforced epoxy composites. It is found that the electrical and mechanical characteristics of the composites treated with plasma is improved especially in the dielectric strength by 20% and tensile strength by 15%, whereas the  $\tan \delta$  is decreased significantly.

### 1. 서론

각종 전기 기기의 절연재료 및 구조재료로서 그 사용량이 최근 급격히 증가하고 있는 유리섬유강화 복합재료의 생산공정 중 핵심기술인 매트릭스(matrix)와 필라(filler)의 계면처리 방법에 관한 새로운 기술개발이 요구되고 있다.[1-3] 지금까지는 계면결합력을 향상시키기 위하여 주로 화합물인 실란계 계면결합제(silane coupling agent)를 수용액으로 하여 필라(유리섬유)표면을 처리해 왔다. 그러나, 처리불량, 고가, 계

면에서의 기포의 발생 등으로 인하여 기계적 강도 집중점으로 되거나 고전압하에서 부분방전이 발생되어 절연파괴에 이르는 원인이 되는 등 여러 가지 문제가 제기되어 왔다.[4-7]

본 연구에서는 이러한 계면결합제의 결점을 해결하기 위한 방안의 하나로 플라즈마 표면처리 기법을 이용하여 필라멘트 표면을 처리한 후 복합재료를 형성하여 그 특성을 연구하였다.

특히, 1차년 도의 연구에서는 유리와 같은 절연물 표면을 균일한 플라즈마로 처리할 수 있는 DC 및 RF 플라즈마 발생장치의 설계·제작 및 플라즈마 파라미터의 계측을 행하였으며, 그 후 발생된 플라즈마를 이용하여 유리표면을 플라즈마 처리한 후 매트릭스(에폭시 수지)에 대한 젖음성 연구를 행하여 그 결과를 보고한 바 있다.[8]

그러므로, 본 연구에서는 유리섬유 표면을 균일하게 플라즈마로 처리하여 유리섬유 강화 복합재료를 제작한 후 이 복합재료의 유전특성 및 기계적 특성에 관한 연구를 행하였다.

### 2. 실험방법

본 연구에서 사용한 유리섬유는 한국화이버 제품(glass cloth #1581, HFG. Co)으로서 그 구조는 그림 1과 같다. 한편 매트릭스로는 국도화학 제품의 에폭시수지(주제 YD-115, 경화제 G-0331)를 이용하였으며 주제와 경화제를 혼합후 액상의 에폭시수지를 80

℃에서 초기 경화할 경우의 상변화는 그림 2와 같다.

한편, 유리섬유 표면처리용 플라즈마 조건은 앞의 연구결과[1]에서 얻어진 최적조건으로써 표 1과 같다. 플라즈마 처리하지 않은 (미처리)유리섬유에 대해서도 비교 연구기 위해 동일과정을 거쳐 복합재료를 형성하였다. 제작된 복합재료의 크기는 직경 약 10cm 이고 두께 200  $\mu\text{m}$ 의 원판상으로 같은 조건에서 10개씩 제작하여 사용하였다.

복합절연재료의 기계적 인장특성 시험에 이용한 장치는 인스트롱사(Instron Co, universal testing instrument model 1000)의 것으로, 최대 500Kg까지 인장과 압축시험이 가능하다. 이 장치는 시험재료에 대하여 시험중 연속하중 변화의 지시가 가능하며, 시험종료에는 최대하중과 파단시의 연신을 지시하게 된다. 본 실험에서 인장시험의 경우 인장시험편의 모양은 그림 3와 같으며, 크로스헤드(cross-head) 속도는 10(mm/min)으로 하였다.

복합절연재료의 유전특성으로서 유전정접( $\tan \delta$ )과 비유전율은 Precision  $\tan \delta$  and Bridge Meter(Tettex AG instrument type 2911)를 이용하여 구하였다. 특히, 기계적 응력하의 교류절연강도 특성은 시료내부의 계면결합강도와 내부기포존재 유무에 따라 민감하게 변화하므로,[4-6] 본 연구에서는 압축 응력하의 교류절연강도 특성을 구해 복합재료의 특성을 고찰하였다. 시험전극으로는 몰드(mold) 구전극과 평판전극 구조로 하였으며 실리콘 유층에서 3KV/s의 속도로 승압시켜 파괴전압을 측정하여 절연강도를 구하였고, 결과는 5회 평균치로서 나타내었다. 계면결합 양부를 판단하기 위하여 인장시험에서 파단된 시료의 파단면에 대한 전자현미경(SEM) 관찰을 병행하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 4는 복합재료 및 소재의 인장강도 특성(S-S curve)을 나타내고 있다. 그림에서 특성곡선 A는 5분간 유리섬유 표면을 플라즈마처리한 후 제작된 복합재료의 인장특성을 나타내고 있으며, B는 2분간 플라즈마 처리한 후 제작된 복합절연재료의 경우를 나타내고 있으며, 그리고, C는 유리섬유 표면을 플라즈마로 처리하지 않고 제작된 복합재료의 경우를 나타내고 있다. 한편, D는 에폭시 수지만의 인장강도특성을 나타내고 있다.

5분간 플라즈마처리한 후 형성된 복합절연재료의 인장강도는 약 23(kg/mm<sup>2</sup>)이었으며 이것에 비해 플라즈마 처리를 하지 않은 복합재료의 인장강도는 약 18(kg/mm<sup>2</sup>)이었다. 그러나, 5분 이상 처리한 복합재

료의 경우 인장강도는 약 23(kg/mm<sup>2</sup>)으로 5분간 처리한 복합재료와 크게 변화가 없었다. 이러한 결과는 접촉각의 변화경향[8]과 잘 일치하였다.

한편 그림 4에서 복합재료에 대한 인장특성 곡선의 항복점 부근에서 곡선이 꺾이어 나타나는 이유는, 초기 피크 부분에서 매트릭스가 크랙으로 파단되고, 이후 전체하중이 유리섬유에 걸리게 되어 최대치를 나타낸 후 하중을 담당하던 일부유리섬유가 파단에 이르게 되며 남아있던 유리섬유가 매트릭스에서 슬립하는 형태로 빠져나오면서 최종 파단에 이르기 때문이다.[7]

그림 5는 인장시험에서 파단된 시료의 파단면을 SEM으로 관찰한 결과를 나타내고 있다. 그림 5(a) 그림은 플라즈마로 처리하지 않은 시료(그림 5의 C시료)에 대한 것으로 유리섬유와 에폭시의 계면결합이 불량하며, 인장시험시 유리섬유는 에폭시와 슬립에 의해 분리되었음을 알수있다. 그림 5(b) 그림은 플라즈마로 5분간 처리한 시료(그림 5의 A시료)에 대한 것으로 유리섬유와 에폭시의 계면결합이 양호하며 그 결과 인장특성도 향상되었다고 생각된다.

그림 6은 미처리 및 플라즈마 처리한 유리섬유강화 복합재료의 압축응력하의 교류 절연강도 특성을 나타내고 있다. 미처리 및 플라즈마 처리된 복합재료의 압축응력하의 절연강도 특성은 초기에는 압축응력이 증가함에 따라 절연강도는 증가하며 최고치를 나타낸 후 감소하는 경향을 나타내었다.

초기절연강도 증가는 압축응력때문에 시료 내부의 결함이 감소하거나 밀도의 증가에 의한 것으로 생각되며, 최고치를 나타낸 후 감소하는 원인은 과도한 압축응력으로 유리섬유와 에폭시가 박리하기 때문에 크랙이나 보이드 등이 증가하고, 고분자쇄의 기계적 파단이 진행되기 때문으로 생각된다.[6]

그림 6에서 알수 있는 바와 같이 미처리 복합재료의 최대 절연강도는 약 100MPa의 압축응력에서 나타나며 그 값은 4(MV/cm)정도였다. 그러나, 플라즈마 처리한 복합재료의 최대절연강도는 약 130MPa에서 나타나며 그 값은 4.7(MV/cm) 정도로서 미처리 시료보다 계면결합 특성이 양호하여 최대 절연강도값 및 최대 절연강도를 나타내는 압축응력값이 모두 증가하는 경향을 나타내었다.

### 4. 결론

본 연구에서는 유리섬유 표면을 플라즈마로 처리한 후, 유리섬유강화 에폭시 복합재료를 제작하여 이 시

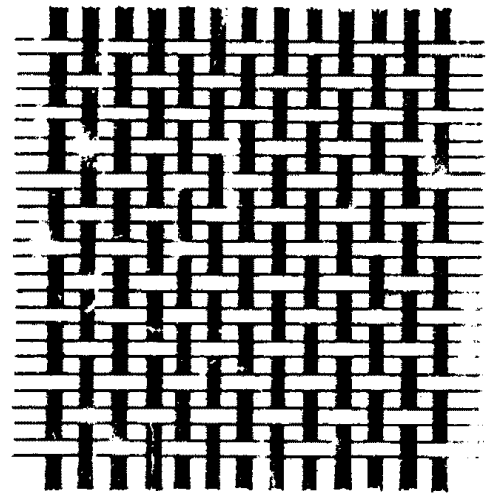
료에 대한 전기적·기계적 특성을 고찰하였으며 그 결과 유리섬유강화 복합재료의 인장강도특성, 파단면에 대한 SEM 사진고찰 및 압축응력하의 절연강도특성에서 유리섬유와 에폭시의 계면결합은 플라즈마로 처리한 후 제작한 복합재료의 경우가 미처리하여 제작한 복합재료보다 현저히 향상됨을 알수 있었다.

특히, 플라즈마 처리한 복합재료의 인장강도는 계면결합이 양호하여 미처리 시료보다 약 15% 증가하였으며, 플라즈마 처리한 복합재료의 유전정점은 미처리한 시료보다 8배이상 감소하여 양호한 특성을 나타내었으나 비유전율의 변화는 거의 없었다. 이의 원인은 플라즈마 처리에 의한 젖음성 향상으로 계면에 미세기포의 형성이 억제되었기 때문으로 생각된다.

플라즈마 처리한 복합재료는 압축응력하의 절연강도특성에서 보면 압축응력 130MPa에서 최대절연강도값 4.7(MV/cm)을 나타내었으며 미처리 시료의 100MPa에서 최대값 4(MV/cm)에 비해 절연강도특성이 크게 향상됨을 알수 있었다.

## 5. 참고문헌

- 1) 久保外, "FRP의 전자 기기에의 응용," 강화 플라스틱(日), Vol. 28, pp. 477-484, 1986.
- 2) S.Nagajima, "Surface Treatment of Fillers for Polymer Composite," Kobunshi Ronbunshu 45, pp. 85-90, 1988.
- 3) E.P.Plueddemann, "Interface in Polymer Matrix Composites," Academic Press, 1974.
- 4) Park, chung Hoo et. al., "Effect of Mechanical Stress of the Dielectric breakdown Strength of FET and FRP," IEEE, Vol. EI-17, pp. 234-240, 1982.
- 5) Park, chung Hoo et. al., "Effect of Temperature and Voltage on Dielectric Breakdown Strength of FET and FRP under Mechanical Stress," IEEE, Vol. EI-17, pp.546-553, 1982.
- 6) Park, chung Hoo, "Effect of Mechanical Stress on the Dielectric Strength of Polymer and Composites," Ph. D. Thesis Kyushu Univ., 1984.
- 7) Park, chung Hoo, "A Study of the Dielectric and Mechanical Properties Interactions of Glass Cloth/Epoxy Composites," IEEE, Vol. EI-22, pp. 389-395, 1987.
- 8) 박정후 외, "반응성 플라즈마 표면처리기법을 도입한 새로운 유리섬유강화 복합 재료의 개발 및 물성연구(1)," 전기학회논문집 Vol. 43, pp. 1664-1670, 1994. 10.



Yarn diameter : 200  $\mu$ m  
Filament diameter : 11  $\mu$ m

그림1. 유리섬유의 직조구조  
Fig1. Structure of glass cloth

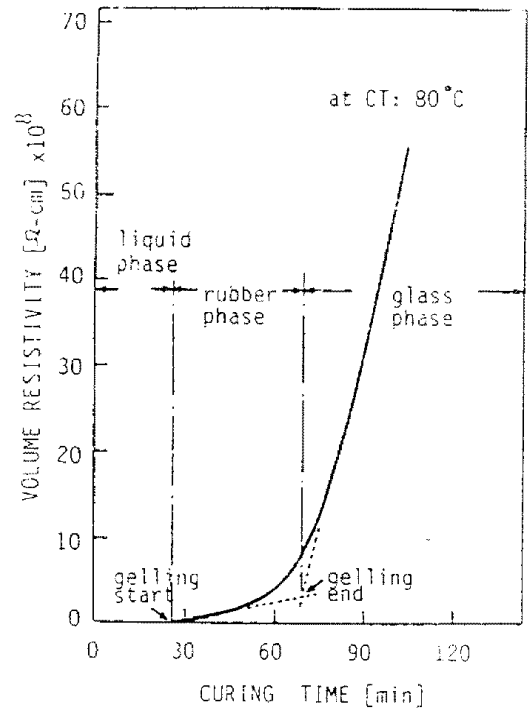


그림2. 80°C에서 경화할 경우 에폭시 수지의 상변화 특성

Fig2. Phase variation of epoxy resin cured at 80°C

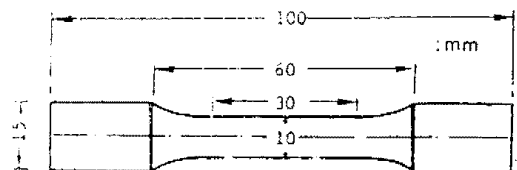


그림3. 복합재료의 인장시험편

Fig3. Test sample for tensile strength

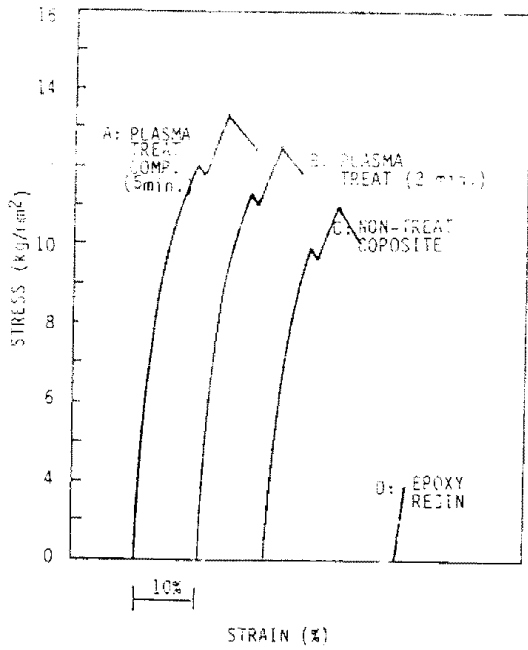


그림4. 시료의 인장시험에서 스트레스-스트레인 특성  
Fig4. The tensile stress-strain characteristics of test samples



(a) untreated sample (x300)



(b) plasma treated sample (x1000)

그림5. 복합재료 파단부의 SEM 사진

Fig5. SEM photos of the fracture surface for the composites

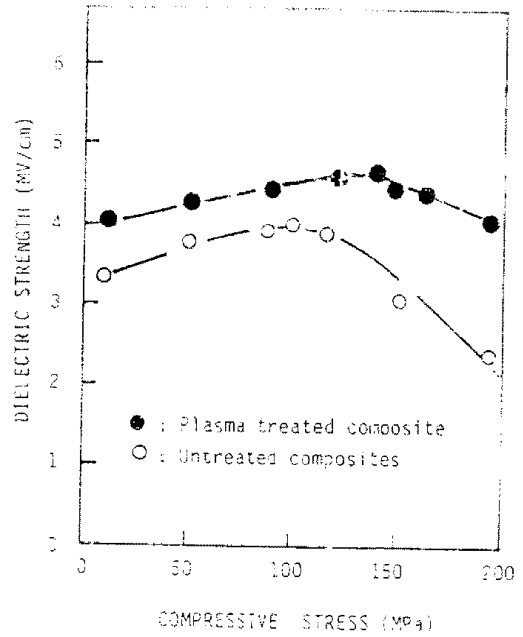


그림6. 복합재료의 압축응력하의 절연강도 특성에 미치는 플라즈마 표면처리효과

Fig6. The effect of plasma surface treatment on the dielectric strength of the composites under compressive stress

표 1. 유리섬유 표면의 플라즈마 처리조건의 요약

Table 1. Plasma treatment conditions on the surface of glass fiber

전 원	DC 2kV
플라즈마 전자온도	2eV
플라즈마 밀도	$4 \times 10^9 (\text{cm}^{-3})$
방전전류	500(mA)
진공도	0.1(torr)
처리시간	0 - 5(min)
바이아스 전압	+150(V)