

# 표면처리된 CFRP와 알루미늄 복합재료의 파괴인성 향상에 대한 연구

이경엽\* · 김만태\* · 최낙삼\*\*

(2002년 10월 28일 접수, 2003년 3월 5일 심사완료)

## A Study on the Fracture Toughness Improvement of Surface-treated CFRP and Aluminum Composites

Rhee Kyong Yop, Kim Man Tae and Choi Nak Sam

**Key Words:** CFRP/Aluminum Composites(CFRP/알루미늄 복합재), Surface Treatment(표면처리), Plasma Treatment(플라즈마 표면처리) Ion Assisted Reaction Method(이온도움반응법), Fracture Toughness(파괴인성)

### Abstract

In this study, the effect of surface treatment of CFRP and aluminum on the fracture toughness of CFRP/aluminum composites was investigated. CFRP was surface-treated by  $Ar^+$  ion beam under oxygen environment, and the aluminum was surface-treated by DC plasma. CFRP was adhesively bonded to aluminum using the secondary bonding procedure. Cracked lap shear specimens were used to determine fracture toughness. Three cases of cracked lap shear specimens were made depending on the surface treatment. The values of fracture toughness of three cases were compared to each other. It was found that the fracture toughness of ion beam-treated CFRP/aluminum composites was almost 72 % higher than that of untreated CFRP/aluminum composites. The fracture toughness of CFRP/plasma-treated aluminum composites was 50 % higher than that of untreated CFRP/aluminum composites.

### 1. 서 론

최근 들어 각 산업에서 이종재를 접착제로 접합하여 새로운 구조물로 적용하는 경우가 증가하고 있다. 하나의 예로 항공산업에서는 노후된 항공기의 기체 보수 및 수명연장을 위해 보론/에폭시 복합재 또는 탄소섬유/에폭시 복합재를 접착제를 이용 균열부위에 접합하는 보수기술을 개발

해 적용하고 있다.<sup>(1-3)</sup> 한편 이종재 구조물의 접합 강도 및 내구성은 접착제의 종류, 이종재의 표면 상태, 성형방법 등에 의해 영향을 받는 것으로 알려져 있다.<sup>(4)</sup> 따라서 이종재 구조물의 물성특성 향상을 위해 각 분야별로 연구가 이루어졌으며 특히 다양한 재료에 대한 표면처리 연구가 상당히 이루어졌다. 현재 폴리머, 금속, 세라믹 재료 등에 적용되고 있는 표면처리로는 케미컬 에칭, 플라즈마, 이온빔, 엑서머 (excimer) 레이저 등 다양한 방법이 적용되고 있다.<sup>(5-7)</sup> 그러나 폴리머/금속, 금속/금속, 폴리머/세라믹 등과 같은 이종재 구조물에 있어 좀더 향상된 접합강도와 파괴특성을 위해서 위 재료에 대한 새로운 표면처리의 연구가 지속적으로 요구되고 있다.

\* 책임저자, 회원, 경희대학교 테크노공학대학

E-mail : rhecky@khu.ac.kr

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

\* 경희대학교 기계공학과 대학원

\*\* 회원, 한양대학교 기계산업공학과

최근에 저자들은 CFRP/알루미늄 복합재에 있어 CFRP를 이온빔으로 표면처리 할 경우 표면처리 안한 경우에 비해 T-peel 강도가 5.5배 이상 증가하며 또한 알루미늄을 플라즈마로 표면처리 하면 전단강도는 34% 이상 향상된다는 것을 발표한 바 있다.<sup>(8,9)</sup> 그러나 CFRP/알루미늄 복합재에 있어 CFRP나 알루미늄을 이온빔 또는 플라즈마로 표면처리 할 경우 얼마나 파괴인성이 향상되는가에 대한 연구결과는 발표된 바 없다.

본 논문에서는 알루미늄과 CFRP (탄소섬유/에폭시) 복합재의 파괴인성을 향상시키기 위해 알루미늄과 CFRP의 표면처리에 대해 다루었다. 이를 위해 알루미늄은 플라즈마로 표면처리 하였고 CFRP는 이온빔으로 표면처리 하였다. 표면처리한 CFRP와 알루미늄을 적용 CFRP/알루미늄 복합재 CLS (Cracked Lap Shear) 시편을 제작한 후 파괴인성 시험을 수행하였다. 이를 표면처리 하지 않은 CFRP/알루미늄 복합재의 파괴인성과 비교 표면처리에 따른 파괴인성 향상을 정량화 하였다. 또한 주사현미경을 이용해 표면처리 유무에 따른 표면면을 비교함으로써 표면처리에 의한 파괴인성 향상 원인을 검토하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 플라즈마에 의한 알루미늄 표면처리

알루미늄 시편의 표면처리를 위해 두께가 3 mm인 Al 7075를 사용 200 mm × 25 mm로 가공하였다. 가공된 시편표면의 오염물을 제거하기 위해 아세톤으로 10분간 초음파 세정하였다. 그 후 에탄올과 삼차 증류수를 사용하여 각각 5분간 초음파로 표면을 세정한 후 고순도 질소(N<sub>2</sub>) 가스를 이용하여 시험편의 표면에 잔류하는 용액을 제거하였다. 플라즈마 형성의 원료기체로는 아세틸렌 (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>)과 질소 (N<sub>2</sub>) 가스를 이용하였으며 두 혼합기체를 5:5의 비율로 처리시간은 30초로 하였다. 진공압력은 1 × 10<sup>-5</sup> Torr, 파워는 200 W, anode와 cathod사이의 거리는 10 cm으로 하였고 전류는 100 mA, 전압은 800~820 V로 하였다. 플라즈마 합성장치 내부로의 원료기체는 질량흐름제어기를 이용하여 공급하였다.

### 2.2 CFRP 성형 및 Ar<sup>+</sup> 이온빔 처리

CFRP 복합재 성형은 탄소섬유/에폭시 프리프

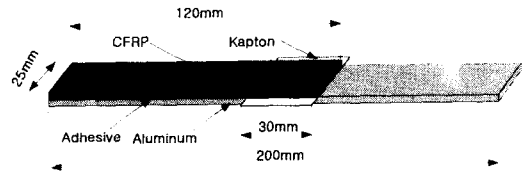


Fig. 1 Schematic diagram of CFRP/Aluminum cracked lap shear specimen

레그 (USN150, (주)SK 케미컬)를 사용하여 [0°/45°/-45°/0°]<sub>3s</sub> 순으로 적층한 후 오토클레이브 (autoclave) 내에서 완성하였다. 성형된 CFRP 패널 (두께: 3mm)을 120 mm × 25 mm 크기로 절단하였으며 이온빔 처리 전의 전처리는 알루미늄과 같이 하였다. CFRP의 Ar<sup>+</sup> 이온빔 처리는 기존의 연구에서 이온빔을 이용한 고분자 개질 방법과는 달리 시편에 반응성 가스를 흘려주어 표면에 친수성 기능그룹이 표면에 형성된다고 발표된 바 있는 이온도움반응법 (Ion-assisted Reaction Method)을 적용하였다.<sup>(10)</sup> 즉 표면처리는 산소 분위기 하에서 Ar<sup>+</sup>를 이용하여 수행하였다. 표면처리시 이온 에너지는 1 Kev로, 진공도는 5 × 10<sup>-5</sup> Torr로, 이온 에너지의 양은 1 × 10<sup>16</sup> ions/cm<sup>2</sup> 하였고 시간은 조건에 적합한 56초로 하였다.

### 2.3 CFRP/알루미늄 CLS 시편제작

CFRP/알루미늄 CLS (Cracked Lap Shear) 시편은 상온에서 경화되는 접착제를 이용 CFRP/접착제/알루미늄 형태로 적층한 후 이를 프레스 내에서 5 kg/cm<sup>2</sup>의 일정 압력으로 상온에서 24시 경화하여 완성하였다. 접착제는 열경화성 에폭시수지인 비스페놀 A형 디글리시딜 에테르(Diglycidyl Ether of Bisphenol A-DGEBA, YD-115, (주)국도화학)과 경화제로 디아닐렌(Dianiline, D-230, (주)국도화학)을 7:3의 수지 혼합비로 사용하였다. 초기 균열은 랩 (CFRP 복합재)과 스트랩 (알루미늄) 계면에 13 μm 두께를 갖는 캡톤막을 30 mm 삽입하여 형성하였다. 파괴시험은 Instron을 사용 일정 변형율 (0.5 mm/min) 하에서 수행하였으며 하중이 가해지는 점의 변형은 Instron에 부착된 LVDT를 이용하여 20 pts/s의 데이터 값을 얻었다. Fig. 1은 CFRP/알루미늄 복합재 CLS 시편의 형상을 나타낸다.

### 3. 결과 및 고찰

컴플라이언스 및 파괴하중 등과 같은 재료의 파괴특성은 하중-변위 선도로부터 결정될 수 있다. Fig. 2는 표면처리 하지 않은 CFRP와 알루미늄을 적용한 시편 (이하 "시편1" 이라 함), 이온빔으로 표면처리한 CFRP와 표면처리 하지 않은 알루미늄을 적용한 시편 (이하 "시편2" 이라 함), 표면처리 하지 않은 CFRP와 플라즈마로 표면처리한 알루미늄을 적용한 시편 (이하 "시편3" 이라 함) 세 경우의 CFRP/알루미늄 CLS 시편의 하중-변위 선도를 비교한 그림이다. 그림에 나타나 있듯이 세 경우 모두 낮은 하중 하에서는 하중이 변형에 대해 선형으로 증가하지만 하중이 더욱 증가하면 변형은 비선형으로 증가한다. 이와 같은 현상은 CLS 시편이 비대칭성 시편으로서 굽힘모멘트가 랩과 스트랩 접합부에서 발생하며 하중이 증가하면 이에 대한 굽힘변형이 무시할 수 없을 정도로 크기 때문이다.<sup>(11)</sup> 또한 균열이 진전 하기전까지 세 경우의 하중-변위 선도가 유사함을 알 수 있다. 이는 CFRP와 알루미늄의 표면처리와는 상관없이 접합이 잘 이루어졌음을 나타낸다 하겠다.

CFRP/알루미늄 복합재에 있어 CFRP와 알루미늄의 표면처리가 얼마나 파괴인성을 향상시키는가를 정량화하기 위해 세 경우 시편에 대한 파괴인성을 측정 비교하였다. 본 연구에서 파괴인성은 일인자방법을 적용해 측정하였다. 일인자방법의 장점은 한 번의 파괴시험으로부터 파괴인성을 결정할 수 있는데 있다. 일인자방법을 적용하였을 때 파괴인성은 다음의 식에 의해 결정할 수 있다.<sup>(12)</sup>

$$G_c = \frac{\eta_{el}}{Bb} A_c \tag{1}$$

윗 식에서  $G_c$ 는 파괴인성을, "B" 는 시편의 폭을 (본 시편의 경우는 25 mm), "b" 는 리가먼트 길이 (본 시편의 경우는 90 mm)를 나타낸다.  $A_c$ 는 균열이 진전할 때의 하중-변위 선도의 면적을 나타내며  $\eta_{el}$ 은 탄성일인자를 나타낸다. 선형 파괴를 나타내는 구조물에 있어  $A_c$ 는 다음과 같이 결정된다.

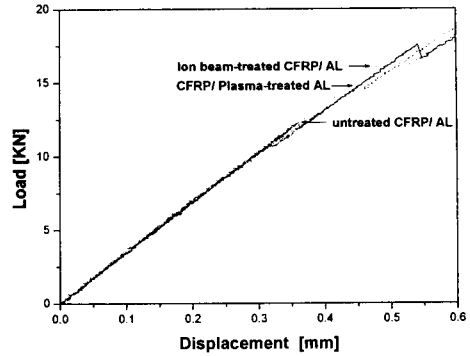


Fig. 2 P- δ curves of CLS tests (untreated CFRP/Al ion-treated CFRP/untreated Al, and untreated CFRP/plasma-treated Al composites)

$$A_c = \frac{1}{2} (P_{cr} \delta_{cr}) \tag{2}$$

식 (2)에서  $P_{cr}$ 은 파괴하중을,  $\delta_{cr}$ 은 파괴하중에 따른 변위를 나타낸다. 탄성일인자,  $\eta_{el}$ 은 컴플라이언스, C 및 컴플라이언스 도함수,  $dC/da$ 로부터 다음과 같이 결정될 수 있다.<sup>(13)</sup>

$$\eta_{el} = \frac{b}{C} \frac{dC}{da} \tag{3}$$

한편 본 연구에서 적용한 CFRP/알루미늄 복합재 CLS 시편의  $\eta_{el}$ 은 다음과 같이 결정된다.<sup>(14)</sup>

$$\eta_{el} = 0.44 - 0.33 \frac{a}{L} \tag{4}$$

따라서 본 연구에 적용한 CLS 시편의 경우 식 (1), (2), (4)로부터 파괴인성 값은 다음과 같이 결정하였다.

$$G_c = \frac{(0.44 - 0.33) \frac{a}{L}}{2Bb} (P_{cr} \delta_{cr}) \tag{5}$$

식 (5)에 나타나 있듯이 일인자방법을 적용해 파괴인성을 결정하기 위해서는 파괴하중 및 그에

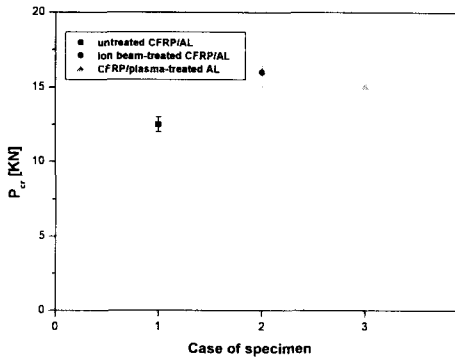


Fig. 3 Comparison of fracture load,  $P_{cr}$  for three cases of specimens

다른 변위 결정이 필요하다.

Fig. 3은 세 경우 시편에 대한 파괴하중,  $P_{cr}$  값을 에러바 (error bar)로 비교한 것을 나타낸다.  $P_{cr}$  값은 초기균열이 진전할 때의 하중 값으로 본 연구에서는 하중-변위 선도에서 변위 증가에 대해 하중이 감소할 때의 하중 값으로 결정하였다. Fig. 3에 나타나 있듯이 CFRP나 알루미늄의 표면 처리에 따라 파괴하중이 달라짐을 알 수 있다. 즉 CFRP를  $Ar^+$  이온빔으로 표면처리 할 경우 ("시편2") 가장 높은  $P_{cr}$  값을 나타냈으며 이는 표면처리 하지 않은 시편 ("시편1") 경우에 비해  $P_{cr}$  값이 28 % 이상 증가하였다. 알루미늄을 플라즈마로 표면처리 한 시편의 ("시편3") 경우에는 "시편1" 경우에 비해  $P_{cr}$  값이 20% 이상 증가하였다. 구체적으로 "시편1", "시편2", "시편3"의 평균  $P_{cr}$  값은 각각 12 KN, 16 KN, 15 KN 이다.

세 경우 시편에 대한 파괴인성,  $G_c$  값은 Fig. 3의  $P_{cr}$  값과 그에 따른 변위 값,  $\delta_{cr}$ 을 적용 식 (5)로부터 결정하였다. Fig. 4는 세 경우 시편의  $G_c$  값을 에러바로 비교한 그림을 나타낸다. Fig. 4에 나타나 있듯이 CFRP/알루미늄 복합재의 파괴인성은 CFRP나 알루미늄의 표면처리에 의해 상당한 영향을 받음을 알 수 있다. "시편1"의 평균  $G_c$  값은  $0.38 \text{ KJ/m}^2$ 이며, "시편2"와 "시편3"의 평균  $G_c$  값은 각각  $0.62 \text{ KJ/m}^2$ 와  $0.54 \text{ KJ/m}^2$ 이다. 즉 CFRP를  $Ar^+$  이온빔으로 표면처리 할 경우 ("시편2") 표면처리 하지 않은 시편 ("시편1") 경우

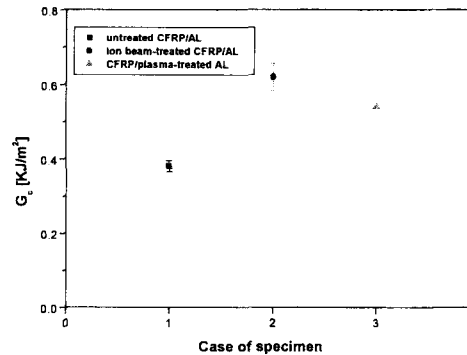


Fig. 4 Comparison of fracture toughness,  $G_c$  for three cases of specimens

에 비해  $G_c$  값 72 % 이상 증가하였으며 알루미늄을 플라즈마로 표면처리 한 시편의 ("시편3") 경우에는 "시편1" 경우에 비해  $G_c$  값이 50 % 이상 증가하였다.

$Ar^+$  이온빔으로 CFRP를 표면처리 하거나 플라즈마로 알루미늄을 표면처리 할 경우 CFRP/알루미늄 복합재의 파괴인성이 왜 증가되는가를 이해하기 위해 주사현미경을 이용 세 경우 시편에 대한 파단면을 비교하였다. Fig.5는 각각 "시편1", "시편2", "시편3" 경우의 CFRP 및 알루미늄 파단면을 주사현미경으로 관찰한 사진이다. Fig. 5에 나타나 있듯이 표면처리 하지 않은 경우에는 접착제와 CFRP 또는 알루미늄 계면이 그대로 분리되는 계면파괴가 일어났음을 알 수 있다. 반면에 이온빔으로 CFRP를 표면처리한 경우에는 계면파괴 대신 접착제의 파괴가 발생했음을 알 수 있다. 이는 이온빔 표면처리로 인해 CFRP 표면에 표면에너지가 커져 젖음성이 증가하며 따라서 접착제가 CFRP 표면에 일정하게 확산된 것에 기인한다. 알루미늄을 플라즈마로 표면처리한 경우에도 접착제의 파괴가 발생한 것을 볼 수 있다. 이는 이온빔 표면처리 경우와 같이 표면에너지 증가로 인한 접착제의 계면확산이 증대되며 동시에 플라즈마 원료기체인 아세틸렌 및 질소가 알루미늄 표면에 극성을 갖게 만들어 주는데 기인한다.

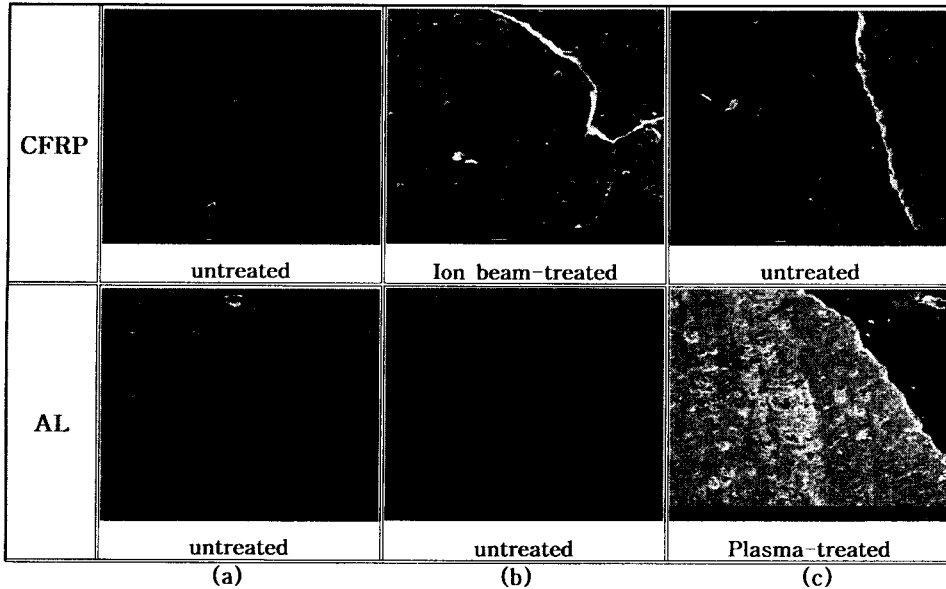


Fig. 5 Fracture surface of three cases of specimens, untreated CFRP/AL  
(a) untreated CFRP/AL, (b) ion beam-treated CFRP/AL, (c) CFRP/plasma-treated AL

#### 4. 결 론

본 논문에서는 접착제로 집합된 CFRP/알루미늄 복합재의 파괴인성을 향상시키기 위해 CFRP와 알루미늄의 표면처리에 대해 다루었다. 즉 CFRP는 이온도움반응법으로 알루미늄은 플라즈마로 표면처리 하였으며 표면처리에 따른 파괴인성 향상을 정량화 하였다. 본 논문의 결론을 다음과 같다.

(1) 이온도움반응법 및 플라즈마를 적용한 CFRP와 알루미늄의 표면처리로 인해 CFRP/알루미늄 복합재의 파괴인성은 상당히 향상된다. 특히 이온도움반응법을 적용한 CFRP의 표면처리가 플라즈마를 적용한 알루미늄의 표면처리보다 파괴인성을 더욱 향상시킨다.

(2) 표면처리 안한 경우의 파괴는 계면파괴인 adhesive 파괴로 발생하였으며 이온도움반응법 또는 플라즈마로 표면처리한 경우에 있어서는 접착제가 파괴되는 cohesive 파괴가 발생하였다. 이는 표면처리에 의해 표면에너지가 증가해 접착제의 계면확산이 증가하는데 기인하는 것으로 사료된다.

#### 후 기

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

#### 참고문헌

- (1) 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.
- (2) 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.
- (3) Baker, A. A., 1999, "Bonded Composite Repair of Fatigue-Cracked Primary Aircraft Structure," *Composite Structures*, Vol. 47, pp. 431~443.
- (4) Baker, A. A. and Jones A. A., Editors, 1988, *Bonded Repair of Aircraft Structures*, Martinus Nijhoff Publishers.

- (5) Marceau, J. A., 1985, Phosphoric Acid Anodize, Adhesive Bonding of Aluminum Alloys, *MarcelDekker*, New York.
- (6) van Ooij, W. J., Sabata, A., Zeik, D. B., Taylor, C. E., Boerio, F. J. and Clarkson, S. J., 1995, "Metal Surface Preparation by Plasma-Polymerized Films," *J. of Testing and Evaluation*, Vol. 23, pp. 33~40.
- (7) Molitor, P., Barron, V. and Young, T., 2001, "Surface Treatment of Titanium for Adhesive Bonding to Polymer Composites: a Review." *International J. of Adhesion and Adhesives*, Vol. 21, pp. 129~136.
- (8) Rhee, K. Y., Yang, J. H. and Choi, N. S., 2001, "Effect of Aluminum Treatment by Plasma on the Bonding Strength between Aluminum and CFRP Composites," *Transaction of the KSME, A*, Vol. 25, pp. 1981~1987.
- (9) Rhee, K. Y., Yang, J. H., Yoon, C. S. and Choi, N. S., 2002, "A Study on the CFRP Treatment by Ion Assisted Reaction Method to Improve T-peel Strength of CFRP/Aluminum Composites," *Transaction of the KSME, A*, Vol. 26, pp. 570~575.
- (10) Choi, W. K., Koh, S. K. and Jung, H. J., 1996, "Surface Chemical Reaction between Poly-carbonate and Kilo-Electron-Volt Energy Ar+Ion in Oxygen Environment," *J. of Vacuum Science & Technology A*, Vol. 14, pp. 2366 ~ 2371.
- (11) Johnson, W. S., 1987, "Stress Analysis of th Cracked-Lap-Shear specimen: An ASTM Round-robin," *J. of Testing and Evaluation*, Vol. 15, pp. 303~324.
- (12) Rice, J. R., Paris, P. C., and Merkle, J. G., 1973, "Some Further Results of J-integral," *Analysis and Estimates*, ASTM STP 536, pp. 231~235.
- (13) Rhee, K. Y. and Ernst, H. A., 1993, "A Study on the Application of Work Factor Approach to Composites Laminates," *J. of Composite Materials*, Vol. 27, pp. 962~972.
- (14) Rhee, K. Y., Choi, N. S. and Park, S.J., "Treatment of CFRP by IAR Method and Its Effect on the Fracture Behavior of Adhesive Bonded CFRP/Aluminum Composites," *Materials Science and Engineering A* (in press).