

유리섬유강화 복합재료의 표면거칠기에 따른 에폭시 접착제의 접착강도 평가

김종현¹ · 신평수¹ · 이상일² · 박종만^{1†}

¹경상대학교 나노신소재융합공학과, 그린에너지융합연구소, ²군산대학교 해상풍력연구원
(2020년 01월 29일 접수, 2020년 02월 25일 수정, 2020년 02월 28일 채택)

Evaluation of Adhesion Property of Epoxy Adhesive with Different Surface Roughness of GFRC

Jong-Hyun Kim¹, Pyeong-Su Shin¹, Sang-Il Lee² and Joung-Man Park^{1†}

¹Department of Materials Engineering and Convergence Technology, Research Institute for Green Energy
Convergence Technology, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

²Institute of Offshore Wind Energy, Kunsan National University, Gunsan 54150, Korea

(Received January 29, 2020, Revised February 25, 2020; Accepted February 28, 2020)

요약: 유리섬유강화 복합재료 (GFRC)의 표면거칠기에 따른 에폭시 접착제의 접착강도를 평가하였고 최적의 표면거칠기를 선정하였다. 서로 다른 입자크기의 알루미나 (Al₂O₃) 입자를 GFRC의 표면에 분사하였고 이를 통하여 서로 다른 표면거칠기를 부여하였다. 표면거칠기를 정량화 하였고 표면거칠기에 따른 표면관찰을 진행하였다. 각 표면거칠기에 따른 접촉각을 측정하였고 이를 통하여 표면에너지 계산을 하였으며, 에폭시 접착제와의 접착일을 계산 및 비교하여 접착력을 예측하였다. 단일랩전단 시험을 통해 접착강도를 평가하였고 거칠기에 따라 접착강도가 증가된다는 것을 확인하였다. 박리 후 표면을 관찰해 보았을 때 기지재인 GFRC의 박리 정도가 다른 것을 확인하였고 최종적으로 표면거칠기의 최적조건을 확인할 수 있었다.

Abstract: Adhesion property of epoxy adhesive was evaluated with different surface roughness of glass fiber reinforced composite (GFRC) and optimized condition of surface roughness was confirmed. Different sizes of alumina (Al₂O₃) particles were blasted to GFRC to control surface roughness of GFRC using sand blasting method. The surface roughness was measured and quantified via surface roughness tester. Contact angle was measured using four types of different solvents. Surface energies and work of adhesion between epoxy adhesive and GFRCs were calculated with different surface roughness of GFRC. Adhesion property between epoxy adhesive and GFRCs was evaluated using single lap shear test and adhesion property increased with surface roughness of GFRC. The fracture surface of GFRCs was observed to evaluate adhesion property. Finally, the optimized roughness condition of GFRCs was confirmed.

Keywords: Adhesion property, Surface roughness, Work of adhesion, Sand blasting method

1.

현재 모든 차량, 항공, 군수산업에서는 경량화를 목적으로 복합재료의 사용량이 점차적으로 증가되고 있으며 [1, 2], 이에 따른 복합재료 부품간의 체결에 대한 연구는 중요시되고 있다. 복합재료 부품의 체결 기법

은 몇 가지 주요 방법이 있으며 첫 번째로 기계적인 접합방법이다. 볼트와 너트, 블라인드 리벳 등 전통적인 방식의 체결은 홀 가공이 필수적이며 홀 가공으로 인해 공정이 추가되고 생산성이 낮아지는 단점이 있다. 또한 홀 가공 중 복합재료가 박리가 발생되며, 홀에서 응력이 집중되어 파손이 쉽게 발생하는 원인이 된다 [3]. 최근 복합재료의 박리를 방지하기 위하여 자체 천공 리벳(Self-piercing riveting, SPR) 공법이 사용되고 있다

[†] Corresponding author: Joung-Man Park (jmpark@gnu.ac.kr)

[4]. 또한 교반용접(friction stir welding, FSW) [5], 마찰 교반 블라인드 리벳(friction stir blind riveting, FSBR) [6], 마찰교반점 결합(friction stir spot joining, FSJ) [7], 기계적 결합 [8], 레이저 결합(laser assisted plastic, LAP) [9] 과 같은 마찰력을 이용한 접합 공정 또한 최근 연구가 많이 진행되고 있다. 다른 방법으로는 화학적인 표면처리를 통한 접합강도 증가이다 [10-12]. 최근에는 부품 사이의 공백을 메움으로써 소음과 진동을 감소시키는 데 기여하는 접합 방법에 대해 몇 가지 연구가 진행되었다. 또한 이러한 방법 중 일부는 제조 과정을 상당히 단순화시킬 수 있다.

접착은 주로 에폭시, 우레탄 등과 같은 유기계 접착제를 사용하여 도포→밀착→경화 과정을 통해 피착재들을 영구적으로 결합시키는 공법으로, 공정온도가 상온~200°C 정도로 비교적 낮고 조절이 용이하며, 피착재 재질 및 치수에 대한 자유도가 높고, 면 접합을 형성하여 응력분산에 유리하다는 특징이 있다 [3]. 하지만 접착제를 이용한 접합은 강화재인 섬유가 불연속으로 되는 구간이고, 이는 구조물의 가장 약한 부분으로 응력에 취약하다. 이러한 문제를 해결하기 위해 접착물성을 증가하기 위한 연구는 최근 지속적으로 진행되고 있다 [13, 14]. 구조용 접착제를 사용할 경우 미국 연방 표준 FS-MMM-A-132B [15]를 충족해야 하며, T-필 테스트 [16, 17] 및 랩 전단 강도 테스트 [18] 등을 통해 계면 접착제를 측정해야 한다. 또한 화학접착제의 구성, 그리고 화학접착 공정의 최적화를 용이하게 하기 위해 부착면을 이해하는 것이 필수적이다. 접착 접합 접합부의 기계적 성능은 재료 특성 및 접합 기하학(접착 두께, 부착 두께), 표면거칠기 등과 같은 여러 가지 매개변수에 따라 결정된다. 표면 거칠기는 접합부의 기계적 특성에 영향을 미치는 중요한 요인 중 하나이고 표면의 거칠기와 접착력의 관계는 매우 복잡하다. 거칠기는 접착제가 기지재 간의 표면의 빈 공간을 채운 후, 접착제가 불규칙한 표면과 접착이 된다 [19]. 기지재의 표면에 거칠기를 부여하는 것은 사포나 샌드 블래스팅과 같이 간단한 방법으로 원하는 표면 특성을 얻을 수 있다. 연마재의 그리드에 따라 표면의 거칠기를 다르게 만들 수 있으며, 표면처리하는 방향을 조절하여 필요한 표면 질감을 만들어낼 수 있다 [20].

본 연구는 GFRC의 표면거칠기에 따른 에폭시 접착제의 접착강도를 평가하였다. 샌드 블래스팅 공법을 통해 서로 다른 입자크기의 알루미늄(Al_2O_3) 입자를 GFRC의 표면에 표면거칠기를 부여하였다. 표면거칠기 측정기를 이용하여 표면거칠기를 정량화하였고 거칠기에 따른 표면관찰을 육안으로 진행하였다. 네 가지 용매를 이용하여 각 거칠기에 따른 접착각을 측정하였고 이를 통하여 표면에너지를 계산하였으며, 표면에너지를 통

해 에폭시 접착제와 GFRC간의 접착일을 계산 및 비교하여 접착력을 예측하였다. 단일랩전단시험을 통해 접착강도를 평가하였고 박리 후 표면을 관찰을 진행하였다. 기지재인 GFRC의 박리 정도가 다른 것을 확인하였고 최종적으로 표면거칠기의 최적조건을 확인할 수 있었다.

2.

2.1.

본 논문에서 기지재로 50 vol%의 GFRC를 사용하였다. $\pm 45^\circ$ 로 직조된 유리섬유매트(SE-1500, 오웬스코닝, 미국)와 비스페놀-A계 에폭시(KFR-121, 국도화학, 한국), 아민계 경화제(KFH-141, 국도화학, 한국)를 이용하여 VARTM (vacuum assisted resin transfer molding) 공법을 통해 GFRC를 제작하였다. 각기 다른 GFRC를 ASTM D5868 기준에서 1/4로 축소된 입자크기인 가로 1 mm, 세로 4 mm로 재단하였다. 그림 1의 장비를 이용하여 접착두께 1 mm로 단일 랩 전단 시편을 제작하였고, 이때 접착제는 비스페놀-A계 에폭시(KFR-730FL, 국도화학, 한국)와 아민계 경화제(KFH-730FL, 국도화학, 한국)를 10대 4.5 무게비율로 혼합하여 사용하였다. 그림 1과 같이 시편을 1 mm 높이로 고정시킨 후에 테이프를 이용하여 접착제가 옆으로 새어나가지 않도록 한 후, 주사기로 접착제를 주입하였다. 이후 70°C 건조 오븐에서 24시간동안 경화를 진행하였다. 단일 랩 전단시험은 만능재료시험기(LloydLR10K, Ametek Inc., 미국)를 이용하여 인장속도는 3 mm/min로 진행하였다. 시편은 각 종류별 5개씩 진행하였고 평균 랩 전단 응력 결과를 이용하여 결과를 분석하였다.

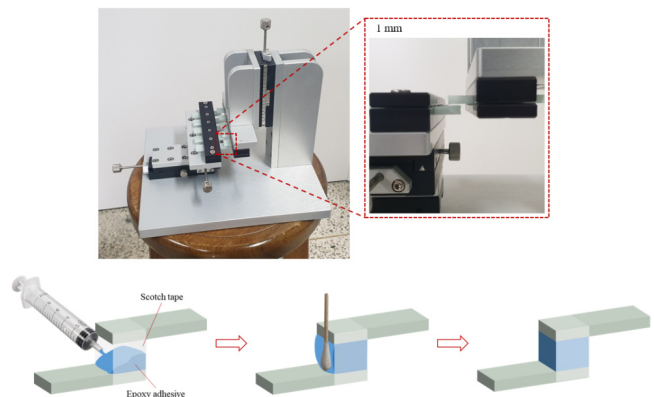
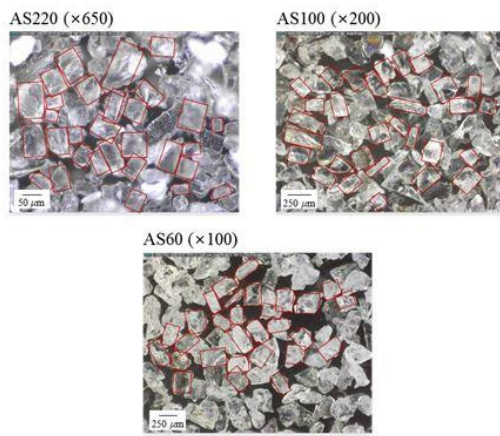


Figure 1. Manufacturing process of single lap shear specimens.



(a)



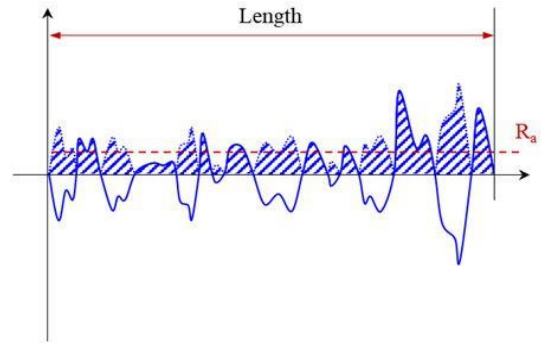
(b)

Figure 2. Schematic plot of sand blasting to GFRC surface: (a) sand blasting process; (b) Al₂O₃ particles.

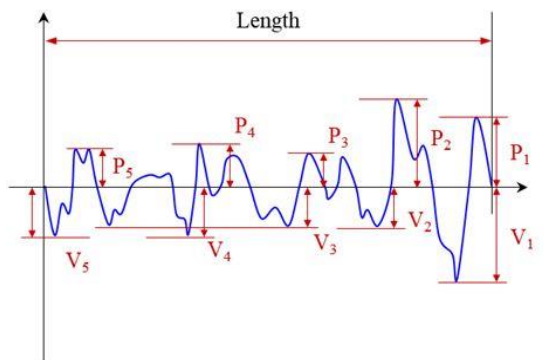
2.2.

그림 2과 같이 샌드 블라스팅 장비(CHB-600, AS ONE, 일본)를 통해 GFRC의 표면 거칠기를 가하였고, 서로 각기 다른 입자크기를 가진 Al₂O₃ (AS-220, AS-100, AS-60, AS ONE, 일본)를 이용하여 표면 거칠기의 정도를 조절하였다. Al₂O₃의 입자크기는 USB현미경 (AM7115MZTL, AnMo Electronics Co., 대만)을 통하여 관찰하였고 약 30개의 파티클을 무작위로 선정하였고 입자크기의 정량화를 진행하였다. 표면거칠기 측정기 (SJ-210, Mitutoyo Co., 일본)를 이용하여 Al₂O₃의 입자크기에 따른 GFRC의 표면거칠기를 가로 1 mm, 세로 1 mm의 범위에서 측정을 진행하였다. 실험의 신뢰도를 높이기 위해 총 5구간의 10점 표면 거칠기를 측정하였다.

그림 3은 평균 표면거칠기(R_a)와 10점 표면거칠기(R_z)의 측정방법이다. 거칠기를 정리하는데 주로 평균 표면거칠기와 10점 표면거칠기가 사용된다. 평균거칠기(R_a)의 경우 다음과 같은 수식을 이용하여 표면거칠기를 계산한다.



(a)



(b)

Figure 3. Schematic arrangement of surface roughness measurement: (a) average roughness; and (b) ten-point average roughness.

$$R_a = \frac{1}{L} \int_0^L |f(x)| dx \tag{1}$$

L은 단위길이를 뜻하며, 단위길이 내의 거칠기의 합을 단위길이로 나눈 값을 이용하여 표면거칠기를 나타낸다. 이는 거칠기의 크기 분포가 큰 경우 미소거칠기가 제외되기 때문에 미소거칠기를 측정해야하는 본 연구에 적합하지 않다.

10점 평균거칠기(R_z)의 수식은 아래와 같다.

$$R_z = \frac{P_5 + V_5}{5} \tag{2}$$

$$P_5 = P_1 + P_2 + P_3 + P_4 + P_5$$

$$V_5 = V_1 + V_2 + V_3 + V_4 + V_5$$

기준길이 내 가장 높은 거칠기(P) 5개의 평균과 가장 낮은 거칠기(L) 5개의 평균을 합한 것으로 이 경우 미소거칠기가 포함이 되기 때문에 본 연구에서는 10점 평균거칠기를 사용하였다.

2.3.

합 거칠기가 각기 다른 GFRC와 에폭시 접착제의 정적접촉각을 측정하였고, 접착일을 계산하여 표면거칠기에 따른 접착특성을 예측하였다.

GFRC와 에폭시 접착제 간의 접착일을 각 시편의 접촉각을 4가지 용매(증류수, 포름아마이드, 에틸렌글리콜, 요오드화메탄)를 이용한 정적 접촉각을 이용하여 분석을 진행하였다. 접촉각은 다음의 Young 식을 이용하여 계산하였다.

$$\gamma_s - \gamma_{SL} = \gamma_L \cos \theta \quad (3)$$

이 식에서 γ_s , γ_{SL} , γ_L 은 각각 고체, 고체와 액체 간, 액체의 표면에너지이다. 전체 표면장력, γ_T 는 Lifshits-van der Waals 조성, γ_{LW} 와 산-염기 조성, γ_{AB} 의 합이다. 산-염기 조성 (혹은 수소결합)은 전자받기, γ^+ 와 전자주기, γ^- 조성을 포함한다. 또한, 접착일, W_a 을 나타내는 변형된 Young-Dupre 식은 다음과 같다.

$$W_a = \gamma_L (1 + \cos \theta) \quad (4)$$

$$= 2(\gamma_L^{LW} \gamma_S^{LW})^{\frac{1}{2}} + 2 \left\{ (\gamma_S^- \gamma_L^+)^{\frac{1}{2}} + (\gamma_S^+ \gamma_L^-)^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (5)$$

고체의 γ_L^{LW} 은 전자받기와 전자주기가 없는 비극성 용액의 접촉각으로부터 구해진다. 극성과 분산표면에너지를 구하기 위해, Owens-Wendt 식은 다음과 같이 나타낸다.

$$W_a = 2(\gamma_S^d \gamma_L^d)^{\frac{1}{2}} + 2(\gamma_S^p \gamma_L^p)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

이 수식들을 통하여 표면거칠기에 따른 GFRC와 에폭시 접착제의 접착일을 계산하였다.

3.

3.1. Al₂O₃

그림 4는 Al₂O₃의 입자크기를 측정하여 정량화한 결과이다. 그리드가 증가됨에 따라 Al₂O₃의 입자크기가 작아지는 것을 확인하였고 입자크기 균질도가 증가되는 것을 확인하였다.

그림 5는 Al₂O₃의 입자크기에 따른 GFRC의 표면거칠기를 3차원 맵핑을 통하여 시각화한 결과이다. Al₂O₃의 입자크기가 작아짐에 따라 GFRC의 표면거칠기가

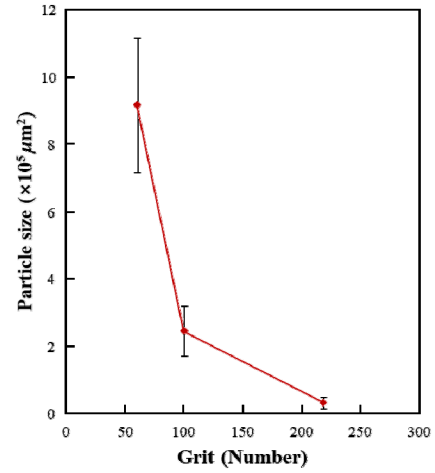


Figure 4. Plot of Al₂O₃ particle size with different grits.

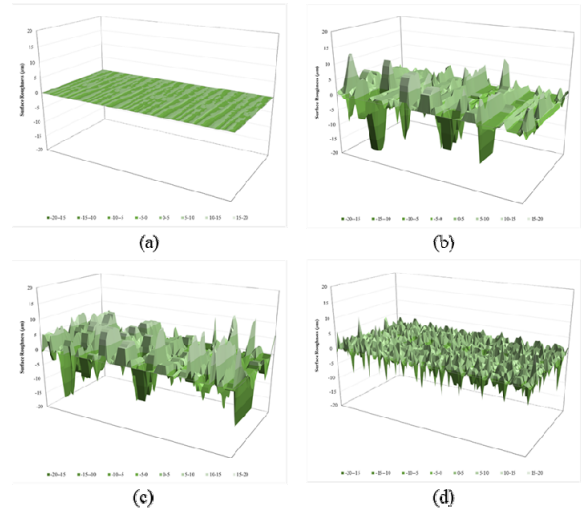


Figure 5. 3D mapping of surface roughness of GFRC with different Al₂O₃ particle size: (a) Neat; (b) AS-60; (c) AS-100; and (d) AS-220.

감소되는 것을 확인하였고, 거칠기의 마루와 마루 간의 간격이 좁아지는 것을 확인하였다. AS-60을 사용하였을 경우, 골의 크기는 커지지만 단위면적당 골의 수가 적어지는 것을 3차원 맵핑을 통해 확인하였고, 표면거칠기가 적은 구간이 넓게 분포되어있는 것을 확인하였다. 이를 통하여 파티클의 크기가 증가됨에 따라 표면거칠기의 최대값은 커지지만 표면거칠기의 분포는 멀어지는 것을 확인하였다.

그림 6은 Al₂O₃의 입자크기에 따른 GFRC의 표면거칠기를 측정하였고 10점 평균 거칠기와 거칠기의 크기를 이용하여 정리하였다. 거칠기의 크기는 거칠기 최대값과 최소값의 차를 통하여 계산하였다. Al₂O₃의 입

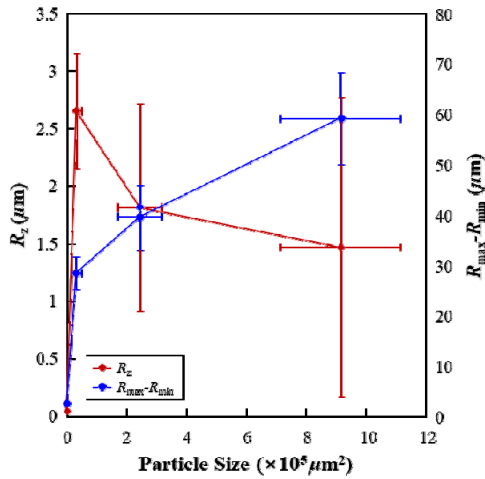


Figure 6. Surface roughness of GFRC with different Al₂O₃ particle sizes

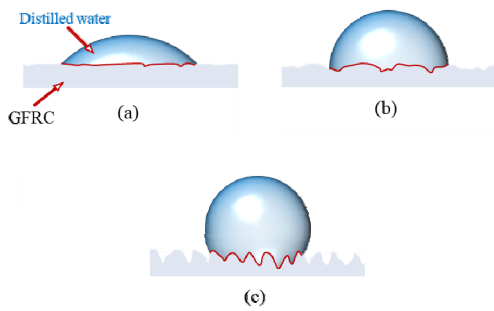


Figure 7. Schematic arrangement of static contact angle with surface roughness: (a) Neat; (b) AS-60 and AS-100; and (c) AS-220.

자크기가 작을수록 거칠기가 비교적 일정하고 커지는 것을 확인할 수 있었다. 거칠기의 깊이를 확인하였을 때 Al₂O₃의 입자크기가 증가됨에 따라 거칠기의 깊이가 증가하는 것을 확인하였다. 두 개의 데이터를 통해 Al₂O₃의 입자크기에 따라 거칠기의 분포 및 거칠기 높이가 달라지는 것을 확인하였다.

3.2. Al₂O₃ GFRC

표 1은 표면 거칠기에 따른 GFRC의 정적접촉각 결과이다. 증류수 정적접촉각 결과를 보았을 때, 표면 거칠기가 증가됨에 따라 접촉각이 증가되는 것을 확인할 수 있었다. 이를 통하여 거칠기에 따른 표면적을 간접적으로 확인할 수 있다. 그림 7은 표면거칠기에 따른 증류수의 정적접촉각 결과이다. 동일한 양의 증류수를 GFRC 표면에 위치시켰을 때, 표면거칠기가 증가됨에

Table 1. Static contact angle of GFRC with different surface roughness

Grit	Distilled Water	Formamide	Ethylene Glycol	Diiodomethane
Neat	89	71	70	69.5
AS-60	90	73	61	60
AS-100	90.5	75	73	50
AS-220	93	76	67	46.5

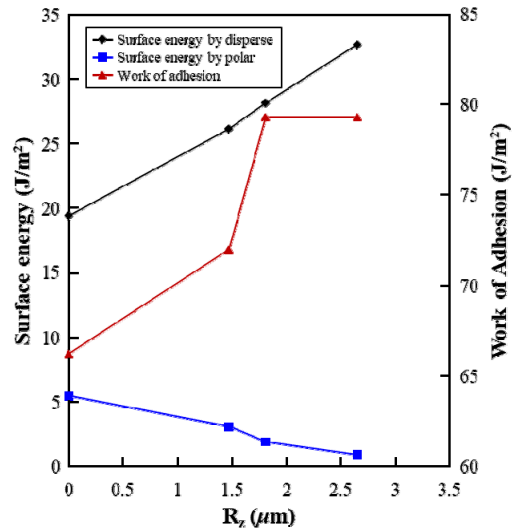


Figure 8. Surface energies by disperse and polar and work of adhesion between epoxy adhesive and GFRC with different surface roughness.

따라 접촉각이 증가되는 것을 확인하였다. GFRC의 표면은 표면거칠기가 달라짐에 따라 화학적인 변화가 없기 때문에 표면에너지는 그대로 유지된다. 하지만 표면거칠기에 의해 단위면적 당 표면적은 증가되게 된다. 이러한 결과는 GFRC가 증류수를 덮으려는 힘인 표면에너지는 일정한 상태에서 표면적이 증가되었기 때문에 발생한 현상임을 확인하였다.

그림 8은 GFRC의 표면 거칠기에 따른 표면 에너지 및 에폭시 접착제와의 접착일을 정리한 결과이다. 표면 거칠기는 파티클의 입자크기가 작아짐에 따라 증가되는 것을 확인하였다. 표면 거칠기가 증가됨에 따라 반데르발스값에 영향을 받는 분산 표면에너지는 급격하게 증가한데 반해, 수소결합에 영향을 받는 극성 표면에너지는 감소하는 것을 확인하였다. 이 두 가지 요소는 서로 반대되는 성질로써, 결과적으로 접착일이 증가되는 것을 확인하였다. 이를 통하여 GFRC의 표면 거칠기가 증가됨에 따라 에폭시 접착제와 접착력이 감소될 것이라는 것을 예측할 수 있었다.

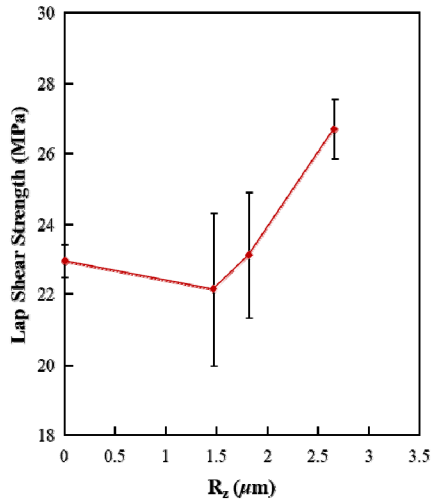


Figure 9. Lap shear strength of GFRC and epoxy adhesive with different surface roughness.

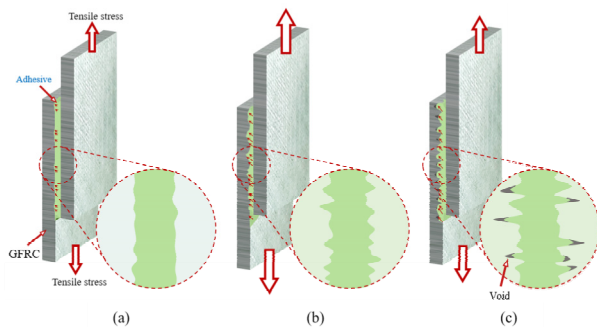


Figure 10. Schematic arrangement of lap shear strength of GFRC and epoxy adhesive with different surface roughness: (a) Neat; (b) AS-100 and AS-220; and (c) AS-60.

3.3. Al₂O₃

그림 9는 표면 거칠기에 따른 GFRC와 에폭시접착제 간의 접착력을 평가하기 위한 단일 랩 전단시험의 결과이다. 표면 거칠기는 파티클의 입자크기가 작아짐에 따라 증가되는 것을 확인하였다. 초기의 거칠기가 증가될 때 접착강도가 약간 감소되는 것을 확인하였으나 이후 거칠기가 증가됨에 따라 랩 전단강도가 급격하게 증가되는 것을 확인하였다. 이는 거칠기가 증가됨에 따라 접착면적이 증가되었기 때문에 접착력이 증가되었다는 것을 확인할 수 있었다. 변곡점이 표면거칠기 1.5 μm에서 발생하는 것을 확인하였는데 이는 접착제가 제대로 내부까지 침투하지 못하여 발생된 결과임을 예상하였다.

그림 10은 GFRC의 표면 거칠기에 따른 접착강도의 변화에 대한 개략도이다. GFRC의 표면 거칠기가 증가

됨에 따라 골과 골 사이로 접착제가 깊게 침투되는 경우 접착면적이 증가되는 것을 볼 수 있다. 접착면적이 증가됨에 따라 면적 당 접착력은 그대로 유지되지만 전체적인 접착강도는 증가되는 것을 확인하였다. 본 실험에서 거칠기가 증가됨에 따라 접착강도가 감소하다가 특정 거칠기부터 접착강도가 증가되는 것을 확인하였는데, 이는 거칠기가 너무 커서 접착제가 제대로 침투하지 못하여 접착강도가 떨어지는 것을 알 수 있었다.

4.

본 연구는 Al₂O₃입자의 입자크기에 따른 GFRC의 표면거칠기를 정량화 하였다. 샌드 블래스팅 공법을 통하여 GFRC의 표면에 거칠기를 부여하였고, Al₂O₃입자의 입자크기가 감소됨에 따라 표면거칠기가 고르게 되고 거칠기의 깊이가 감소되는 것을 확인하였다. 4가지 용매를 이용한 정적접촉각을 통해 거칠기가 다른 GFRC의 표면에너지 및 GFRC와 에폭시 접착제 간의 접착일을 계산하였고 이를 통해 접착강도를 어느정도 예측할 수 있었다. 접착일을 통하여 표면거칠기가 증가됨에 따라 접착강도가 증가되는 것을 예측하였다. GFRC의 표면거칠기에 따른 GFRC와 에폭시접착제 간의 접착강도를 단일 랩 전단시험을 통해 평가를 진행하였다. 표면거칠기 1.5 μm에서 변곡점이 발생하는 것을 확인하였고, 이는 접착제가 제대로 골과 골 사이로 침투하지 못해 강도가 떨어지게 된다는 것을 확인하였다. 하지만 표면거칠기 1.5 μm 이후부터는 접착강도가 증가되는 것을 확인하였고 이는 접착제가 제대로 침투됨에 따라 접착면적이 급격하게 증가되어 나타나는 결과임을 확인하였다.

본 연구는 휴먼컴퍼지트에서 지원하는 용역과제의 후원을 받아 진행한 연구 결과입니다.

References

1. P. Karthikeyan, M.S. Raja, R. Hariharan, R. Karthikeyan, S. Prakash, *Materials Today: Proceedings*, **4**, 3263 (2017).
2. T. Ishikawa, K. Amaoka, Y. Masubuchi, T. Yamamoto, A. Yamanaka, M. Arai, J. Takahashi, *Composites Science and Technology*, **155**, 221 (2018).
3. Y. Boutar, S. Naïmi, S. Mezlini, M. B. S. Ali, *International Journal of Adhesion & Adhesives*, **67**, 38 (2016).

4. A. Gay, F. Lefebvre, S. Bergamo, F. Valiorgue, P. Chalandon, P. Michel, P. Bertrand, *International Journal of Fatigue*, **83**, 127 (2016).
5. M.N. Avettand-Fenoel, A. Simar, *Materials Characterization*, **120**, 1 (2016).
6. S. Lathabai, V. Tyagi, D. Ritchie, T. Kearney, B. Fennin, *SAE International Journal of Materials and Manufacturing*, **4**, 589 (2011).
7. E. Boldsaikhan, S. Fukada, M. Fujimoto, K. Kamimuki, H. Okada, B. Duncan, P. Bui, M. Yeshiambel, B. Brown, A. Handyside, *Friction Stir Welding and Processing IX*, 237 (2017).
8. F. Lambiase, D.C. Ko, *Composite Structures*, **164**, 180 (2017).
9. A. Roesner, S. Scheik, A. Olowinsky, A. Gillner, U. Reisgen, M. Schleser, *Physics Procedia*, **12**, 370 (2011).
10. R.V. Subramanian, *The Chemistry of Solid Wood*, **207**, 323 (1984).
11. S. Pantelakis, K.I. Tserpes, *Science China Physics, Mechanics & Astronomy*, **57**, 2 (2014).
12. S. Budhe, M.D. Banea, S. de Barros, L.F.M. da Silva, *International Journal of Adhesion & Adhesives*, **72**, 30 (2017).
13. J. Jefferson Andrew, V. Arumugam, C. Santulli, *Composite Structures*, **143**, 63 (2016).
14. J. Jefferson Andrew, V. Arumugam, C. Santulli, *Composite Structures*, **143**, 63 (2016).
15. J.J.M. Machado, P.M.-R. Gamarra, E.A.S. Marques, Lucas F.M. da Silva, *Composites Part B*, **138**, 243 (2018).
16. FS-MMM-A-132B: Federal specification: Adhesives, Heat resistant, Airframe structural, Metal to metal.
17. Z. Mi, Z. Liu, J. Yao, C. Wang, C. Zhou, D. Wang, X. Zhao, H. Zhou, Y. Zhang, C. Chen, *Polymer Degradation and Stability*, **151**, 80 (2018).
18. S. Teixeira de Freitas, M.D. Banea, S. Budhe, and S. de Barros, *Composite Structures*, **164**, 68 (2017).
19. S.M.R. Khali, A. Shokuhfar, S.D. Hoseini, M. Bidkhorji, S. Khalili, R.K. Mittal *International Journal of Adhesion & Adhesives*, **28**, 436 (2008).
20. A. Baldan, *International Journal of Adhesion & Adhesives*, **38**, 95 (2012).
21. O. Çoban, E. Akman, M. Özgür Bora, B. Genc Oztoprak, A. Demir, *Polymer Composites*, **40**, 3611(2019).