

## 유리섬유강화 복합재료와 에폭시 접착제의 가사시간과 경화습도에 따른 접착 강도 평가

유지훈<sup>1</sup> · 신평수<sup>2</sup> · 김종현<sup>2</sup> · 이상일<sup>3</sup> · 박종만<sup>1,2,†</sup>

<sup>1</sup>경상대학교 나노신소재공학부 고분자공학과, <sup>2</sup>경상대학교 나노신소재융합공학과, 그린에너지융합연구소,  
<sup>3</sup>군산대학교 해상풍력연구원

(2020년 06월 10일 접수, 2020년 06월 16일 수정, 2020년 06월 29일 채택)

## Evaluation of Adhesion Property with Pot Life and Curing Humidity of GFRC and Epoxy Adhesive

Ji-Hoon Yoo<sup>1</sup>, Pyeong-Su Shin<sup>2</sup>, Jong-Hyun Kim<sup>2</sup>, Sang-Il Lee<sup>3</sup> and Joung-Man Park<sup>1,2,†</sup>

<sup>1</sup>Department of Materials Science and Engineering, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

<sup>2</sup>Department of Materials Engineering and Convergence Technology, Research Institute for Green Energy  
Convergence Technology, Gyeongsang National University, Jinju 52828, Korea

<sup>3</sup>Institute of Offshore Wind Energy, Kunsan National University, Gunsan 54150, Korea

(Received June 10, 2020; Revised June 16, 2020; Accepted June 29, 2020)

**요약:** 각각의 다른 복합재료를 연결하는 데 주로 에폭시 접착제가 사용되고 있다. 에폭시 접착제는 대표적인 열경화성 수지로서 에폭시와 경화제의 경화 반응을 통해 선형구조에서 3차원의 망상 구조로 변하게 되어 접착을 한다. 경화제의 종류에 따라 비율 및 경화 조건 등이 변하며, 이러한 조건에 따라 물성이 달라진다. 접착공정이 대형화 됨에 따라 접착제를 바르고 즉시 접착하지 못하기 때문에, 대기 시간동안 습도 및 온도 등 외부환경에 영향을 받아 접착제의 접착력 저하로 이어지게 된다. 본 논문에서는 유리섬유강화 복합재료에 에폭시 접착제를 사용하여 접착하였고, 단일 랩 전단 시험을 통하여 가사시간에 따른 에폭시 접착제의 접착강도를 평가하였다. 가사시간에 따른 접착력 변화를 확인하기 위하여, 복합재료에 에폭시 접착제를 바르고 상온에서 각 시간에 따라 대기한 후 접착하였다. 단일 랩 전단 강도를 통하여 일정시간 이상 가사시간을 오래 둘 수록 접착강도가 감소한다는 것을 확인하였다. 습도조건에 따른 접착력 변화를 확인하기 위하여, 경화습도 조건을 항온항습기로 조절하여 경화 시켰고, 습도조건에 따른 접착 강도를 단일 랩 전단 시험을 통해 접착력을 평가하였다. 적은 양의 수분은 에폭시 접착제의 경화 반응을 가속시켜 접착 강도를 증가시켰으나, 일정 이상의 과도한 수분은 오히려 접착강도를 감소시킴을 확인하였다.

**Abstract:** Epoxy adhesive was mainly used to combine different composite materials. Epoxy adhesive was a typical thermosetting resin that can be bonded by changing from a linear structure to a three-dimensional network structure by curing reaction of epoxy and hardener. The curing conditions of epoxy adhesive were different with different types of hardener such as mixing ratio, curing time, and temperature. These curing conditions affected to the adhesive property of epoxy adhesive. In industry, it was difficult to proceed the applying epoxy adhesive and combining two parts immediately. The adhesive property decreased by humidity and pre-curing of epoxy adhesive in waiting time between two processes. In this paper, the glass fiber reinforced composite (GFRC) was combined with epoxy adhesive and adhesion property between epoxy adhesive and GFRCs was evaluated using single lap shear test. The different waiting times and humidity conditions were applied to epoxy adhesive in room temperature and adhesive property decreased as the waiting time increased. In small amount of humidity, the adhesive property increased because a small amount of moisture in the surroundings accelerated the curing reaction. In certain amount of humidity, however, the adhesion property decreased.

**Keywords:** Adhesion property, Lap shear test, Curing condition, Pot life, Humidity

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

### 1. 서론

복합재료란 두 종류 이상의 소재를 복합하여 물리적, 화학적으로 각각의 소재가 원래의 상을 유지하면서 성능은 더욱 우수하도록 만든 재료이다[1]. 대표적인 예로 섬유 강화 플라스틱이 있으며, 섬유 강화 플라스틱은 플라스틱 기지재에 유리섬유나 탄소섬유, 아라미드섬유 등으로 강화한 복합재료이다. 기지재에는 주로 불포화 폴리에스테르나 에폭시수지 등 열가소성수지 또는 열경화성수지를 사용한다. 섬유 강화 플라스틱은 무게 대비 강도가 우수하여 경량화에 주로 쓰이는 소재이다[2]. 이로 인해 항공·우주, 자동차, 철도차량, 선박, 방위산업 제품, 스포츠 용품 및 건설 자재에 이르기까지 널리 사용되며 특히 자동차 분야에서는 자동차의 무게를 줄여 연비를 낮출 뿐만 아니라 탄소 발생을 줄여 환경까지 고려 가능한 소재이다[3,4].

복합재료 간의 접착에 대한 연구가 계속 진행되고 있다. 접착제는 각 다른 재료를 연결하는데 사용하는 재료로 볼트나 리벳 및 용접 등의 이전 연결 방법과 비교하여 접착제의 사용은 주재료에 손상이 가지 않는다[5]. 접착은 주로 에폭시가 사용된다. 에폭시는 대표적인 열경화성 수지 중 하나로서 경화제나 경화촉진제의 존재 하에서 경화 반응을 통해 선상 구조가 3차원의 망상 구조로 변하게 되며, 에폭시 수지의 관능기의 개수에 따라 가교도가 결정된다[6]. 에폭시 수지는 경화 후 접착강도가 강하며 기계적 특성이 뛰어나고 내열성, 전기절연특성이 높다[7]. 에폭시 수지는 경화제의 종류에 따라서 비율, 경화 조건 등이 다르다[8]. 에폭시 수지의 높은 반응성으로 다양한 화합물과 반응을 가능하게 한다[9-11].

접착제를 이용한 접합은 복합재료 두 물체를 하나의 물체가 된 것처럼 만드는 것이지 하나의 물체는 아니므로 접착 부분은 가장 약한 부분이며, 접착 물성에 대한 연구는 계속 진행되고 있다[12]. 연구 중에는 에폭시가 접착되는 과정에서 수분은 수소결합에 영향을 주어 접착 물성을 저하한다는 결과가 있다[13]. 따라서 각 접착제 별로 경화 조건을 지키는 것은 중요하다[14]. 하지만

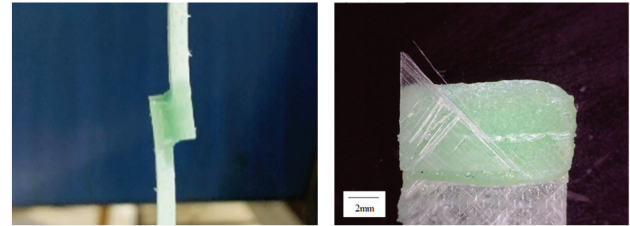
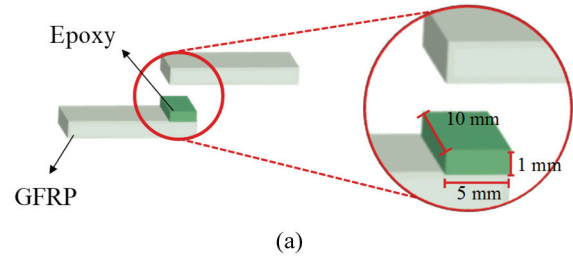


Figure 1. Scheme of single lap shear specimens: (a) size of specimen; and (b) photos of lap shear test.

실제 대형화된 공정에서는 접착제를 바른 즉시 접착하기 어려움이 있으며, 경화시의 습도 조절도 매우 힘든 일이다. 이에 본 논문은 가사시간에 따라서 에폭시 접착제의 접착 강도를 랩 전단 시험을 이용하여 측정하였고, 경화 시 습도 조건도 설정하여 실험을 진행하였다.

### 2. 실험

#### 2.1. 시편 제작

본 논문에서는 기지재로 50 vol%의 유리섬유강화복합재료를 사용하였다. ±45°로 직조된 유리섬유매트(SE-1500, 오웬스코닝, 미국)에 비스페놀-A 계 에폭시(KFR-121, ㈜국도화학, 한국)와 아민계 경화제(KFH-141, ㈜국도화학, 한국)를 10:3 무게 비율로 사용하여 VARTM (Vacuum assisted resin transfer molding) 공법으로 유리섬유강화 복합재료를 제작했다. 그 후 시편을 ASTM D5868 기준에서 1/4로 축소한 크기인 가로 10 mm, 세로 40 mm로 절단하여 시편으로 사용하였다. Fig. 1과 같이 단일 랩 전단 시험 시편을 만들기 위한

Table 1. Chemical structures of the epoxide monomer and the curing agent

Types	Chemical Structure	Model	Manufacture Company
Bisphenol-A-Epoxy		KFR-730FL	Kukdo Co.
Amine Hardener		KFH-730FL	Kukdo Co.

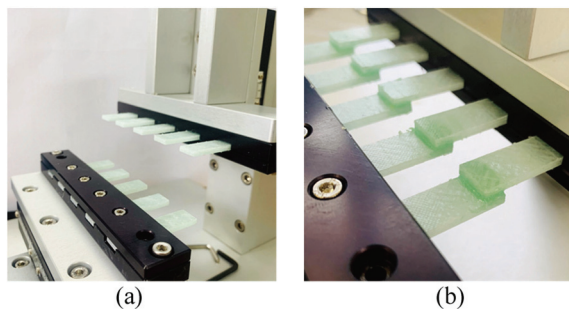
**Table 2.** Lap shear strength and modulus with pot life

Pot Life (hours)	Average of Lap Shear Strength (MPa)	COV <sup>2)</sup>	Modulus (MPa)
0	24.5 (2.1) <sup>1)</sup>	8.6	142.8 (5.2) <sup>3)</sup>
1	25.0 (1.0)	3.9	147.0 (4.2)
3	26.6 (2.0)	7.3	170.1 (8.6)
6	23.6 (1.4)	5.8	135.4 (6.2)
9	17.5 (1.6)	9.1	119.0 (3.0)

1) Standard deviation of lap shear strength

2) Coefficient of variation of lap shear strength

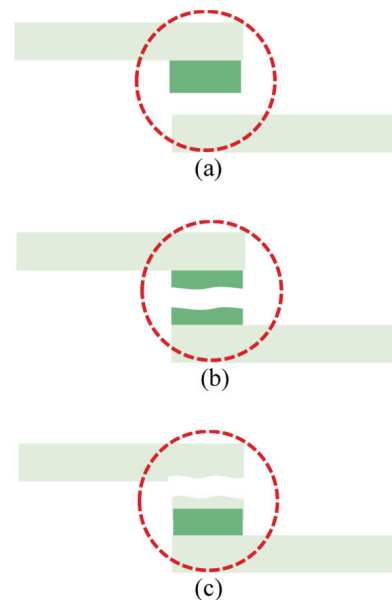
3) Standard deviation of lap shear modulus

**Figure 2.** Manufacturing process of single lap shear specimens: (a) before adhesion; (b) after adhesion.

접착제로 비스페놀-A계 에폭시(KFR-730FL, (주)국도화학, 한국) 와 아민계 경화제 (KFH-730FL, (주) 국도화학, 한국)를 100:45 무게 비율로 혼합하여 사용하였다. 경화는 80°C에서 10시간 동안 진행하였다.

## 2.2. 실험 방법

복합재료 시편을 Fig. 2(a)와 같이 10개의 시편을 끼워 넣은 후 접착 면에 에폭시를 발랐다. Fig. 2의 기구를 이용하면 접착면적과 접착 두께를 일정하게 설정할 수 있다. 접착 두께는 1 mm, 폭은 5 mm로 설정하여 실험을 진행하였다. 두께를 맞추는 과정에서 접착제가 옆으로 나온 것은 면봉을 이용하여 닦아주었다. 가사 시간을 주기 위해 밑에 있는 복합재료 시편에 에폭시를 바르고 접착하지 않은 상태로 상온 25°C, 습도 20~30%에서 1, 3, 6 그리고 9시간 대기하였다. 시간이 지나고 위의 시편을 내려 접착시켜 건조 오븐(OF-22GW, 제이오테크, 한국)에서 80°C로 설정하여 10시간 경화하였다. 습도에 관한 실험은 항온항습기(TH-ME-025, 제이오테크, 한국)를 이용하였다. 온도는 경화 조건인 80°C로 동일하게 설정하였고 습도는 여름에 80%까지 올라가는 기후 환경을 고려하여 10, 30, 60 그리고 80%로 설정하여 항온항습기 내부에서 경화하였다. 경화가 완료된 각 시편들은 단일 랩 전단 시험으로 평가하였

**Figure 3.** Types of fracture types in the lap shear test: (a) Adhesive failure; (b) Cohesive failure; and (c) Fiber-tear failure.

다. 단일 랩 전단 시험은 만능재료시험기(Lloyd LR10K, Ametek Inc., 미국)를 이용하여 인장 속도 1 mm/분으로 측정하였다. 시편은 각각 5개씩 제작하여 실험을 진행하였고 단일 랩 전단 강도 결과의 평균을 이용하여 분석하였다.

## 3. 결과 및 토의

### 3.1. 가사시간에 따른 랩 전단강도 변화

Fig. 4는 각기 다른 가사시간에 대한 랩 전단 강도의 변화를 나타내었다. 각 조건에 따라 5회의 랩 전단 시험을 진행하였다. 그래프를 통하여, 랩 전단 강도가 가사시간 3시간까지 접착력이 증가하였지만, 3시간 이후로는 랩 전단 강도가 감소한 것을 확인하였다. 특히, 가사시간 6 시간 이후부터는 랩 전단 강도가 초기 조건

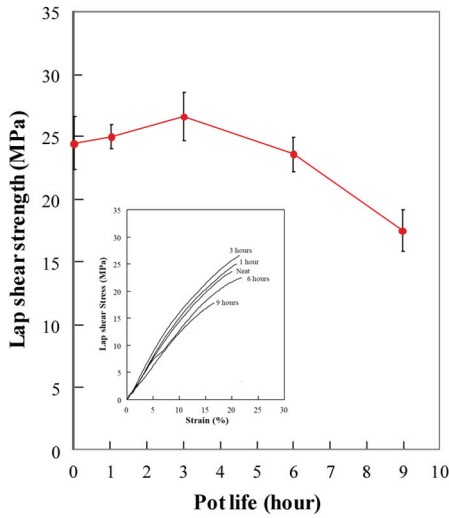


Figure 4. Comparison of the lap shear strength with pot life.

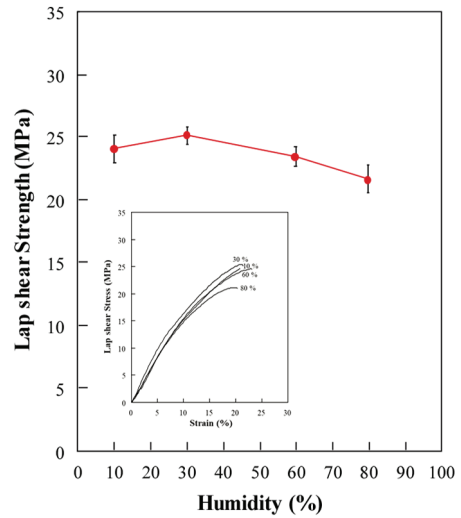


Figure 6. Comparison of the lap shear strength with curing humidity

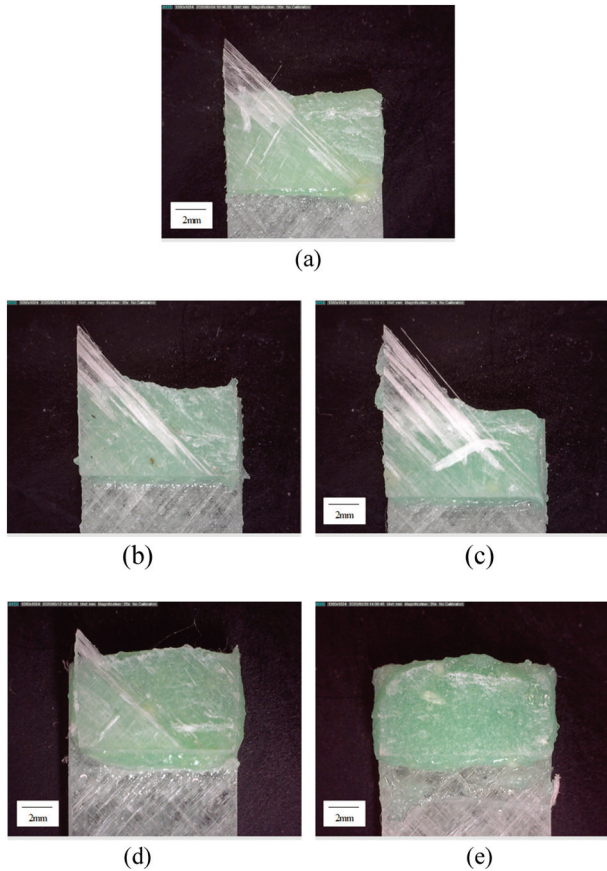


Figure 5. Photographs of lap shear specimens fracture with pot life: (a) 0 hour; (b) 1 hour; (c) 3 hours; (d) 6 hours; and (e) 9 hours.

보다 낮아진 것을 확인하였다. 가사시간 9시간 실험의

경우 접착제 바깥쪽이 경화가 어느 정도 진행되어 수지가 다소 딱딱 하였다. 이는 가사시간 동안 비스페놀-A계 에폭시와 아민계 경화제가 가사시간동안 선경화하여 상대적으로 유리섬유 강화복합재료와 에폭시 접착제 사이의 접착력이 감소함을 알 수 있었다. 특히, 가사시간 9시간 이후의 경우 과도한 경화가 진행되어 단일 랩 전단 실험이 불가하였다.

Fig. 5는 단일 랩 전단 시험을 한 후 시편의 파단된 면을 나타내었다. 초기부터 6시간 까지는 섬유찢김파괴 형태로 유리섬유강화복합재료 시편이 찢어져서 에폭시 접착제에 묻은 것으로 확인하였다. 반면 접착강도가 떨어진 9시간은 유리섬유강화복합재료 시편이 묻어있지 않은 계면파괴 형태로 파단된 것을 확인하였다.

### 3.2. 경화습도에 따른 랩 전단강도 변화

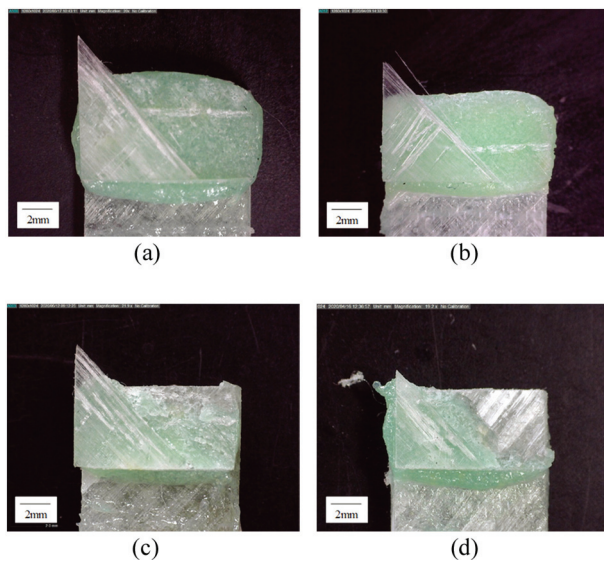
Fig. 6은 경화 시 각 습도조건에 따른 랩 전단 강도를 나타내었다. 30% 습도 조건에서 평균 랩 전단 강도가 증가하는 반면에, 습도가 증가할수록 평균 랩 전단 강도가 감소하는 것을 확인하였다. 적은 양의 수분조건에서, 수분이 가지고 있는 하이드록실기가 인접해 있는 에폭사이드의 개환반응을 촉진하는 촉매역할을 하여 경화반응을 가속시킨다[15]. 그러나, 수분이 과도하게 많은 조건에서는, 수분이 접착제와 복합재료 사이에 침투하고, 접착제와 복합재료 간 수소결합에 영향을 주어 접착강도를 저하시킨다[13]. 에폭시는 경화를 진행하면서 에폭사이드가 개환하여 하이드록실기(-OH)로 변하게 된다[16]. Fig. 8(a) 와 같이 하이드록실기가 수소결합을 형성하여 유리섬유강화복합재료와 에폭시간에 접착을 가능하게 한다. 하지만 주변에 수분이 접착계면으로



**Table 3.** Lap shear strength and modulus with curing humidity

Humidity (%)	Average of Lap Shear Strength (MPa)	COV <sup>2)</sup>	Modulus (MPa)
10	24.1 (1.1) <sup>1)</sup>	4.5	166.2 (2.5) <sup>3)</sup>
30	25.2 (0.7)	2.8	180.5 (3.9)
60	23.5 (0.8)	3.4	165.0 (3.7)
80	21.7 (1.1)	5.1	150.1 (5.4)

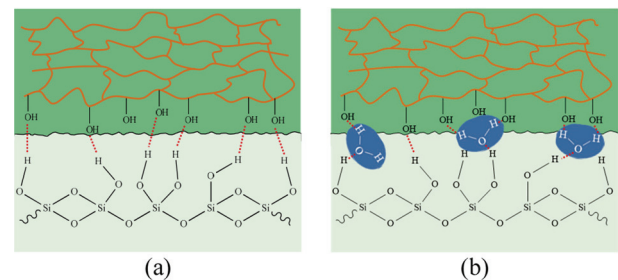
- 1) Standard deviation of lap shear strength  
 2) Coefficient of variation of lap shear strength  
 3) Standard deviation of lap shear modulus

**Figure 7.** Photographs of lap shear specimens fracture with curing humidity: (a) 10%; (b) 30%; (c) 60%; and (d) 80%.

과도하게 침투하게 되면 Fig. 8(b)와 같이 유리섬유강화복합재료와 에폭시 사이의 수소결합을 대신하게 된다[17]. 이로 인해 접착제와 복합재료 간 수소결합을 방해하여 접착강도를 저하시킨다.

#### 4. 결론

본 연구는 유리섬유강화 복합재료에 에폭시를 이용하여 접착하고, 가사시간을 두었을 때 접착 강도 변화와 경화할 때의 습도에 따라 접착 강도 변화를 확인하였다. 에폭시를 바르고 3시간 이하로 대기하였다가 접착할 경우 접착 물성을 저하시키지 않았고 오히려 랩 전단강도가 증가하였다. 그러나 3시간 이상 대기하였다가 접착할 경우 랩 전단 강도가 감소하였고 9시간 이상으로는 에폭시가 경화로 인해 딱딱해져 접착할 수 없었다. 이는 에폭시와 경화제가 상온에서도 느리게 바깥 부분부터 경화를 진행한 결과로 유리섬유강화 복합재

**Figure 8.** Scheme of adhesion between GFRP and epoxy: (a) dry condition; and (b) wet condition.

료와 접착이 잘 되지 않은 것이다. 경화 습도 조건에 관한 접착 강도는 30%에서 약간 증가했으나, 그 이상 습도가 높아질수록 접착 강도를 저하되는 것을 확인하였다. 소량의 수분은 에폭시 경화를 가속하여 접착 강도를 증가시켰으나, 일정 이상의 도달할 경우 에폭시 경화 속도가 감소하고 수분이 수소결합을 대신하여 접착 강도를 떨어트렸다. 이번 연구를 통해 에폭시를 경화할 때 가사시간과 습도 조건이 접착 강도에 영향을 미칠 수 있다는 것을 알 수 있었고 최적조건을 제시하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 휴먼컴퍼지트에서 지원하는 용역과제로 진행된 연구이므로 이에 감사드립니다.

#### References

- Lopresto, V., Caggiano, A., & Teti, R., *Procedia CIRP*, **46**, 71–82, (2016).
- Karthikeyan, P., Senthil Raja, M., Hariharan, R., Karthikeyan, R., & Prakash, S., *Materials Today: Proceedings*, **4**(2), 3263–3269, (2017).
- Njuhovic, E., Bräu, M., Wolff-Fabris, F.,

- Starzynski, K., & Altstädt, V., *Composites Part B: Engineering*, **81**, 1–13, (2015).
4. Ishikawa, T., Amaoka, K., Masubuchi, Y., Yamamoto, T., Yamanaka, A., Arai, M., & Takahashi, J., *Composites Science and Technology*, **155**, 221–246, (2018).
  5. Boutar, Y., Naïmi, S., Mezlini, S., & Ali, M. B. S., *International Journal of Adhesion and Adhesives*, **67**, 38–43, (2016).
  6. Ahmed, S., Chakrabarty, D., Mukherjee, S., & Bhowmik, S., *Journal of Adhesion Science and Technology*, **32**(7), 705–720, (2017).
  7. Chen, Y., Zhang, H.-B., Yang, Y., Wang, M., Cao, A., & Yu, Z.-Z., *Advanced Functional Materials*, **26**(3), 447–455, (2015).
  8. A. Pattanaik, M. Mukherjee, & S.B. Mishra., *Composites Part B: Engineering*, Volume **176**, (2019).
  9. Yang, S., Zhang, Q., Hu, Y., Ding, G., Wang, J., Huo, S., Cheng, J., *Materials Letters*, **216**, 127–130, (2018).
  10. Musa, C., Kervoëlen, A., Danjou, P.-E., Bourmaud, A., & Delattre, F., *Materials Letters*, 126818, (2019).
  11. Mora, A.-S., Tayouo, R., Boutevin, B., David, G., & Caillol, S., *European Polymer Journal*, 109460, (2019).
  12. Jefferson Andrew, J., Arumugam, V., & Santulli, C., *Composite Structures*, **143**, 63–74, (2016).
  13. Lettieri, M., & Frigione, M., *Construction and Building Materials*, **30**, 753–760, (2012).
  14. Kotynia, R., Adamczewska, K., Strąkowska, A., Masłowski, M., & Strzelec, K., *Procedia Engineering*, **193**, 423–430, (2017).
  15. Lixin Wu, Suong V. Hoa, Minh-Tan Ton-That., *Journal of Applied Polymer Science*, 92(4), (2003).
  16. Longo, J. M., Sanford, M. J., & Coates, G. W., *Chemical Reviews*, **116**(24), 15167–15197, (2016).
  17. Lefebvre, D. R., Elliker, P. R., Takahashi, K. M., Raju, V. R., & Kaplan, M. L., *Journal of Adhesion Science and Technology*, **14**(7), 925–937, (2000).