



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2019년04월29일  
 (11) 등록번호 10-1947085  
 (24) 등록일자 2019년02월01일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
*B32B 37/12* (2006.01) *B32B 37/24* (2006.01)  
*B32B 38/00* (2006.01) *B32B 38/16* (2006.01)  
*B32B 7/12* (2019.01)  
 (52) CPC특허분류  
*B32B 37/12* (2013.01)  
*B32B 38/0004* (2013.01)  
 (21) 출원번호 10-2017-0047824  
 (22) 출원일자 2017년04월13일  
 심사청구일자 2017년04월13일  
 (65) 공개번호 10-2018-0115471  
 (43) 공개일자 2018년10월23일  
 (56) 선행기술조사문헌  
 JP2001287295 A\*  
 (뒷면에 계속)

(73) 특허권자  
 한국과학기술연구원  
 서울특별시 성북구 화랑로14길 5 (하월곡동)  
 (72) 발명자  
 김재우  
 전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92  
 양범주  
 전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92  
 (뒷면에 계속)  
 (74) 대리인  
 특허법인충현

전체 청구항 수 : 총 14 항

심사관 : 이민우

(54) 발명의 명칭 탄소복합소재와 이종소재의 접착 및 분리 제어기술

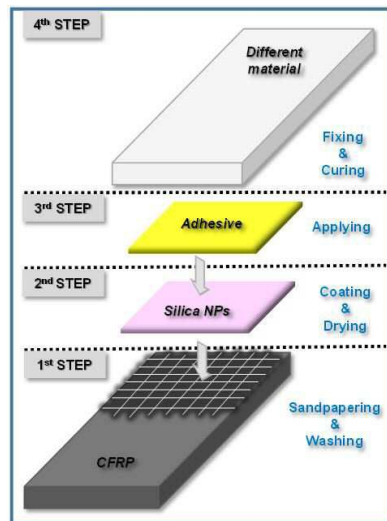
**(57) 요약**

본 발명은 탄소복합소재의 접착 및 분리의 제어기술에 관한 것으로, 보다 상세하게는 양 소재 간의 결합력을 향상시키고 분리가 용이한 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법에 관한 것이다.

본 발명의 여러 구현예에 따른 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법은 탄소복합소재와 결합되는 금속 등의 이종소재와의 접착 강도를 향상시키는데 현저한 효과를 나타낸다.

또한, 상기 접합체를 분리함에 있어서, 양 소재 간의 어떠한 손상 없이도 분리가 용이한 효과를 나타낸다.

**대표도** - 도1



(52) CPC특허분류

- B32B 38/0012* (2013.01)
- B32B 38/0036* (2013.01)
- B32B 38/162* (2013.01)
- B32B 38/164* (2013.01)
- B32B 7/12* (2019.01)
- B32B 2037/243* (2013.01)
- B32B 2264/102* (2013.01)
- B32B 2309/02* (2013.01)
- B32B 2309/04* (2013.01)

(72) 발명자

**정용채**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

**이헌수**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

**양철민**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

**김성륜**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

**김경태**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

**권혁필**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

**조준용**

전라북도 완주군 봉동읍 추동로 92

(56) 선행기술조사문헌

- KR1020100083543 A\*
- KR100628841 B1
- JP5880238 B2
- JP2003301148 A
- JP2008194974 A

\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	2017014439
부처명	미래창조과학부
연구관리전문기관	한국연구재단
연구사업명	나노·소재기술개발
연구과제명	산화그래핀 기반 고분산/고농도 전도성 그래핀-고분자 중간재 제조기술 개발
기여율	1/1
주관기관	한국과학기술연구원
연구기간	2017.03.01 ~ 2018.02.28

**명세서**

**청구범위**

**청구항 1**

- (A) 탄소복합소재의 표면을 전처리하는 단계;
  - (B) 상기 전처리된 탄소복합소재의 표면에 실리카를 분산매에 분산시킨 콜로이드 분산액 상태로 도포하는 단계;
  - (C) 상기 실리카가 도포된 탄소복합소재에 접착제를 도포하는 단계; 및
  - (D) 상기 접착제가 도포된 탄소복합소재에 이종소재를 고정시키고 열처리하는 단계;를 포함하며,
- 상기 (B) 단계에서 상기 실리카는 탄소복합소재 접착 부위의 단위면적당 0.5 내지 3.0 mg/cm<sup>2</sup>으로 도포되고,
- 상기 (B) 단계는 상기 실리카를 도포한 후 건조시키는 공정을 추가로 수행하며,
- 상기 건조는 상기 분산매가 40 내지 100%로 포화된 공기조건에서 수행되는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 2**

제1항에 있어서,

상기 탄소복합소재는 탄소계 소재가 고분자 수지, 금속 및 세라믹 중에서 선택된 1종 이상에 함침된 것으로,

상기 탄소계 소재는 탄소분말, 탄소섬유, 탄소시트 및 탄소필러 중에서 선택된 1종 이상인 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 3**

제1항에 있어서,

상기 이종소재는 철 금속, 비철 금속, 또는 이들의 혼합물이며,

상기 철 금속은 탄소강, 합금강 및 주철 중에서 선택된 1종 이상이고,

상기 비철 금속은 알루미늄, 구리 및 망간 중에서 선택된 1종 이상인 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 4**

제1항에 있어서,

상기 (A) 단계의 전처리 공정은

- (A1) 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재를 절단하고 건조시키는 단계,
- (A2) 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재의 양 표면을 사포 처리하는 단계, 및
- (A3) 상기 사포 처리된 탄소복합소재와 상기 이종소재의 양 표면을 세척 용매로 세척하고 건조하는 단계로 수행되며,

상기 사포 처리는 수직방향, 수평방향, 우측 사선방향 및 좌측 사선방향으로 각각 1 내지 20회 수행되는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 5**

제4항에 있어서,

상기 사포 처리는 면사포, 천사포, 목재용사포, 목공용사포 및 금속사포 중에서 선택된 1종 이상의 사포를 사용하며,

상기 사포는 거칠기가 100 내지 2000 mesh인 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 6**

제4항에 있어서,

상기 (A3)의 세척은 증류수로 1차 세척한 후, 아세톤, 에탄올, 이소프로판올, 메탄올 및 헥산 중에서 선택된 1종 이상으로 2차 세척하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 7**

제1항에 있어서,

상기 실리카를 분산매에 분산시킨 콜로이드 분산액의 농도는 0.1 내지 20 w/v%인 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 8**

제7항에 있어서,

상기 분산매는 디메틸포르아마이드, 아세톤, 메탄올, 에탄올 및 디클로로메탄 중에서 선택된 1종 이상이며,

상기 분산매는 20 내지 50 °C의 온도로 조정하여 사용하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 9**

제7항에 있어서,

상기 실리카의 분산은 기계적 혼합 또는 음파 분쇄기를 이용하여 수행되며,

상기 음파 분쇄기는 10 내지 50 KHz에서 수행되는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 10**

제7항에 있어서,

상기 분산매의 pH는 3 내지 10인 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 11**

제1항에 있어서,

상기 (B) 단계에서 실리카는 딥 코팅법, 드롭 코팅법 및 슬롯 다이코팅법 중에서 선택된 1종 이상의 방법으로

도포하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 12**

삭제

**청구항 13**

삭제

**청구항 14**

제1항에 있어서,

상기 (C) 단계에서 접착제는 고체상 또는 액체상을 사용하며,

상기 접착제는 아크릴 수지, 에폭시 수지 및 우레탄 수지 중에서 선택된 1종 이상인 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 15**

제1항에 있어서,

상기 접착제는 0.001 내지 0.1 mm의 두께로 도포하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**청구항 16**

제1항에 있어서,

상기 열처리하는 100 내지 250 °C의 온도에서 1 내지 100분 동안 수행되는 제1 열처리 후,

10 내지 50 °C 온도를 상승시켜 10 내지 30분 동안 수행되는 제2 열처리하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법.

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 탄소복합소재의 접착 및 분리의 제어기술에 관한 것으로, 보다 상세하게는 양 소재 간의 결합력을 향상시키고 분리가 용이한 탄소복합소재-이종소재 복합체의 제조방법에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 탄소섬유강화고분자(carbon fiber reinforced polymer, CFRP) 복합소재는 탄소계 소재와 고분자 소재 등 두가지 이상 소재가 혼합된 형태로 밀도가 낮아 가볍고 강도와 탄성이 우수하여 고강도 경량화가 필요한 레저용품, 항공, 자동차, 인공위성, 그리고 건축자재 등의 다양하고 넓은 분야에서 큰 각광을 받고 있는 첨단 신소재이다.

[0003] 매년 CFRP의 수요는 지속적으로 증가하고 있으며, 특히 경량화가 필요한 항공기 산업(보잉 787, 신형 전투기 등)에서는 중량의 50%까지 금속을 대체하여 사용되고 있고 자동차 산업(BMW, 현대자동차 등)에서 역시 내충격성/경량화를 위해 CFRP로 제작된 부품이 점차 증가하고 있는 추세이다.

[0004] 상술한 CFRP가 폭넓게 사용되기 위해 해결해야 할 가장 큰 문제는 이미 사용되고 있는 이종소재와의 연결 및 접합이다. 즉, 기존 금속 같은 이종소재와 CFRP를 함께 사용하기 위해서는 접착제를 이용한 접합 기술의 개발이

필수적이다. 금속과의 연결을 위해 사용되었던 기존의 접합 방법들(볼팅, 용접 등)은 CFRP 소재에 손상을 주고 계면에서의 접합력이 약해지는 문제점을 갖는다.

[0005] 이러한 문제를 해결하기 위해 CFRP와 기존 금속과 같은 이종소재에 동시에 화학적 접착 메커니즘을 가지는 접착제 개발이 최근 가속화되고 있다. 하지만, 접착제를 적용하면 금속과 CFRP의 분리(debonding)시 CFRP에 손상이 가고 이는 CFRP의 수리나 재활용 측면에서 큰 걸림돌이 되고 있다. 현재 대부분의 CFRP 폐기물이 매립되고 있으며, 증가하는 CFRP 수요와 더불어 CFRP의 수리와 재활용 기술은 환경적 및 경제적인 문제점 측면에서 크게 대두되고 있는 실정이다. 따라서, 친환경성과 경제성을 위해 향상된 접착 강도를 제공하면서 CFRP 손상없이 분리(debonding)되는 접착방법의 개발이 시급하다.

**선행기술문헌**

**특허문헌**

[0006] (특허문헌 0001) 한국공개특허 2014-0026520호

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0007] 따라서, 종래의 문제점을 해결하기 위한 본 발명의 목적은 탄소복합소재와 이종소재가 결합된 접합체의 접착 강도를 향상시키고자 하는 것이다.

[0008] 또한, 상기 접합체를 분리할 경우 양 소재 간의 어떠한 손상없이도 분리가 용이한 탄소복합소재-이종소재 접합체를 제공하고자 하는 것이다.

**과제의 해결 수단**

[0009] 본 발명의 대표적인 일 측면에 따르면, (A) 탄소복합소재의 표면을 전처리하는 단계; (B) 상기 전처리된 탄소복합소재의 표면에 실리카를 도포하는 단계; (C) 상기 실리카가 도포된 탄소복합소재에 접착제를 도포하는 단계; 및 (D) 상기 접착제가 도포된 탄소복합소재에 이종소재를 고정시키고 열처리하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법에 관한 것이다.

[0010] 상기 (A) 단계의 전처리 공정은 (A1) 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재를 절단하고 건조시키는 단계, (A2) 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재의 양 표면을 사포 처리하는 단계, 및 (A3) 상기 사포 처리된 탄소복합소재와 상기 이종소재의 양 표면을 세척 용매로 세척하고 건조하는 단계로 수행되며, 상기 사포 처리는 수직방향, 수평방향, 우측 사선방향 및 좌측 사선방향으로 각각 1 내지 20회 수행되는 것이 바람직하다.

[0011] 상기 (A3)의 세척은 증류수로 1차 세척한 후, 아세톤, 에탄올, 이소프로판올, 메탄올 및 헥산 중에서 선택된 1종 이상으로 2차 세척하는 것이 바람직하다.

[0012] 상기 탄소복합소재는 탄소계 소재가 고분자 수지, 금속 및 세라믹 중에서 선택된 1종 이상에 함침된 것으로, 상기 탄소계 소재는 탄소분말, 탄소섬유, 탄소시트 및 탄소필러 중에서 선택된 1종 이상인 것이 바람직하다.

[0013] 상기 이종소재는 철 금속, 비철 금속, 또는 이들의 혼합물이며, 상기 철 금속은 탄소강, 합금강 및 주철 중에서 선택된 1종 이상이고, 상기 비철 금속은 알루미늄, 구리 및 망간 중에서 선택된 1종 이상인 것이 바람직하다.

[0014] 상기 사포 처리는 면사포, 천사포, 목재용사포, 목공용사포 및 금속사포 중에서 선택된 1종 이상의 사포를 사용하며, 상기 사포는 거칠기가 100 내지 2000 mesh인 것이 바람직하다.

[0015] 상기 실리카는 분산매에 분산시킨 콜로이드 분산액 상태로 도포하고, 상기 실리카 콜로이드 분산액의 농도는 0.1 내지 20 w/v%인 것이 바람직하다.

[0016] 상기 분산매는 디메틸포르아마이드, 아세톤, 메탄올, 에탄올 및 디클로로메탄 중에서 선택된 1종 이상이며, 상

기 분산매는 20 내지 50 °C의 온도로 조정하여 사용하는 것이 바람직하다.

- [0017] 상기 실리카의 분산은 기계적 혼합 또는 음파 분쇄기를 이용하여 수행되며, 상기 음파 분쇄기는 10 내지 50 KHz에서 수행되는 것이 바람직하다.
- [0018] 상기 분산매의 pH는 3 내지 10인 것이 바람직하다.
- [0019] 상기 (B) 단계에서 실리카는 딥 코팅법, 드롭 코팅법 및 슬롯 다이코팅법 중에서 선택된 1종 이상의 방법으로 도포하는 것이 바람직하다.
- [0020] 상기 (B) 단계는 상기 실리카를 도포한 후 건조시키는 공정을 추가로 수행하며, 상기 건조는 상기 분산매가 40 내지 100%로 포화된 공기조건에서 수행되는 것이 바람직하다.
- [0021] 상기 (B) 단계에서 상기 실리카는 탄소복합소재 접착 부위의 단위면적당 0.5 내지 3.0 mg/cm<sup>2</sup>으로 도포되는 것이 바람직하다.
- [0022] 상기 (C) 단계에서 접착제는 고체상 또는 액체상을 사용하며, 상기 접착제는 아크릴 수지, 에폭시 수지 및 우레탄 수지 중에서 선택된 1종 이상인 것이 바람직하다.
- [0023] 상기 접착제는 0.001 내지 0.1 mm의 두께로 도포하는 것이 바람직하다.
- [0024] 상기 열처리는 100 내지 250 °C의 온도에서 1 내지 100분 동안 수행되는 제1 열처리 후, 10 내지 50 °C 온도를 상승시켜 10 내지 30분 동안 수행되는 제2 열처리하는 것이 바람직하다.

**발명의 효과**

- [0025] 본 발명의 여러 구현예에 따른 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법은 탄소복합소재와 결합되는 금속 등의 이종소재와의 접착 강도를 향상시키는데 현저한 효과를 나타낸다.
- [0026] 또한, 상기 접합체를 분리함에 있어서, 양 소재 간의 어떠한 손상 없이도 분리가 용이한 효과를 나타낸다.

**도면의 간단한 설명**

- [0027] 도 1은 본 발명의 일 구현예에 따른 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법을 도시화한 것이다.
- 도 2는 본 발명에서 사용된 농도별 실리카 콜로이드를 나타낸 이미지이다.
- 도 3의 (a)는 아무런 처리를 하지않은 bare CFRP의 표면, (b)는 사포 처리된 CFRP의 표면, (c)는 실리카 콜로이드가 도포된 CFRP의 표면, (d)는 실리카 콜로이드를 도포한 후 건조시킨 후에 CFRP의 표면을 나타낸 이미지이다.
- 도 4는 CFRP 접착 부위에서의 실리카 입자 분포 형상을 확인하기 위하여 주사형 전자 현미경(Field emission scanning electron microscope, FE-SEM)을 통해 분석한 결과를 나타낸 이미지이다.
- 도 5는 접착제 종류 및 실리카 콜로이드 분산액의 농도별 접착강도(검은색 선형 그래프)와 CFRP의 파손 면적(붉은색 막대 그래프)을 나타낸 그래프로, (a)는 Araldite 2011-A/B, (b)는 LF-501 접착제이다.
- 도 6은 실시예와 대조군의 접착 강도의 비교를 위한 스트레스-스트레인 곡선 그래프이다.
- 도 7은 실시와 대조군의 결합된 소재를 각각 분리한 후 CFRP의 파손여부를 분석한 이미지로, (a)는 대조군인 bare CFRP, (b)는 실시예를 나타낸다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0028] 이하에서, 본 발명의 여러 측면 및 다양한 구현예에 대해 더욱 구체적으로 살펴보도록 한다.
- [0029] 본 발명의 일 측면에 따르면, (A) 탄소복합소재의 표면을 전처리하는 단계;
- [0030] (B) 상기 전처리된 탄소복합소재의 표면에 실리카를 도포하는 단계;

- [0031] (C) 상기 실리카가 도포된 탄소복합소재에 접착제를 도포하는 단계; 및
- [0032] (D) 상기 접착제가 도포된 탄소복합소재에 이종소재를 고정시키고 열처리하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 탄소복합소재-이종소재 접합체의 제조방법을 제공한다.
- [0033] 상기 제조방법의 각 단계를 구체적으로 설명하자면 다음과 같다.
- [0034] 먼저, 상기 (A) 단계는 탄소복합소재와 이종소재가 접촉되는 표면을 전처리하는 단계로, 하기 공정대로 수행되는 것이 더욱 바람직하다. 하기 공정대로 수행되어야만 후 공정인 실리카와 접착제가 뭉침현상없이 고르게 도포될 수 있음을 확인하였다.
- [0035] 상기 (A) 단계는 (A1) 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재를 절단하고 건조시키는 단계, (A2) 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재의 양 표면을 사포 처리하는 단계, 및 (A3) 상기 사포 처리된 탄소복합소재와 상기 이종소재의 양 표면을 세척 용매로 세척하고 건조하는 단계로 수행되는 것이 바람직하다.
- [0036] 보다 상세하게는, 먼저 상기 탄소복합소재와 상기 이종소재를 용도에 따라 절단하고 건조시킨 다음 상기 탄소복합소재와 이종소재의 양 표면을 사포로 처리하는 것이 바람직하다. 이때, 균일한 표면 처리를 위하여 모든 방향 즉, 수직방향, 수평방향, 우측 사선방향, 및 좌측 사선방향으로 각각 1 내지 20회 작업하는 것이 더욱 바람직하다. 만일 한 방향으로만 사포를 처리하는 경우에는 낮은 접착력과 불균일한 실리카 도포의 원인이 된다.
- [0037] 더욱 바람직하게는 상기 사포는 면사포, 천사포, 목재용사포, 목공용사포 및 금속사포 중에서 선택된 1종 이상을 사용하는 것이며, 상기 사포의 거칠기는 100 내지 2000 mesh인 것이 바람직하다.
- [0038] 그리고, 사포 처리된 탄소복합소재와 이종소재는 증류수로 1차 세척한 후, 아세톤, 에탄올, 이소프로판올, 메탄올 및 헥산 중에서 선택된 1종 이상으로 2차 세척한 후에 건조시키는 것이 바람직하다.
- [0039] 상기 탄소복합소재는 탄소계 소재가 고분자 수지, 금속 및 세라믹 중에서 선택된 1종 이상에 함침된 것으로, 상기 탄소계 소재는 탄소분말, 탄소섬유, 탄소시트 및 탄소필러 중에서 선택된 1종 이상인 것이 바람직하다.
- [0040] 상기 이종소재는 철 금속, 비철 금속, 또는 이들의 혼합물이며, 상기 철 금속은 탄소강, 합금강 및 주철 중에서 선택된 1종 이상이고, 상기 비철 금속은 알루미늄, 구리 및 망간 중에서 선택된 1종 이상인 것이 바람직하다.
- [0041] 그 중에서도 탄소복합소재로 탄소섬유강화고분자를 사용하고, 이종소재로는 알루미늄, 알루미늄 합금 및 철 중에서 선택된 1종 이상을 사용했을 때, 다른 소재와 달리 장시간 후에도 초기 접착력을 유지하는 것을 확인하였다.
- [0042] 상기 (B) 단계는 상기 (A) 단계를 통해 전처리된 탄소복합소재의 표면에 실리카를 도포한 후 건조시키는 단계이다.
- [0043] 상기 실리카는 접착제의 접착력을 향상시키는 역할을 하였으며, 상기 탄소복합소재와 이종소재를 분리시킬 경우, 양 소재의 손상 없이 분리될 수 있도록 하는 역할을 하였다.
- [0044] 바람직하게는, 상기 실리카는 분산매에 분산시킨 콜로이드 분산액 상태로 도포하는 것이다. 상기 실리카 입자를 분산매에 효과적으로 분산시키기 위해서는 기계적 혼합 또는 음파 분쇄기(sonicator)를 사용하는 것이며, 상기 음파 분쇄기는 10 내지 50 KHz에서 1 내지 20분 동안 분산시키는 것이 바람직하다.
- [0045] 이때, 상기 실리카 콜로이드 분산액의 농도는 0.1 내지 20 w/v%인 것이 더욱 바람직하며, 더욱 바람직하게는 1 내지 10 w/v%인 것이다. 만일 상기 농도가 0.1 w/v% 미만이거나 20 w/v%를 초과하는 경우에는 효과가 미미하거나, 농도가 높을수록 분산이 어렵기 때문에 실리카 입자의 뭉침 현상이 생기게 되어 접착력을 약화시킬 수 있다.
- [0046] 상기 분산매로는 디메틸포르아마이드(dimethylformamide, DMF), 아세톤(acetone), 메탄올(methanol), 에탄올(ethanol) 및 디클로로메탄(dichloromethane, DCM) 중에서 선택된 1종 이상을 사용하는 것이 바람직하며, 상기 분산매는 20 내지 50 °C의 온도로 조정하여 사용하는 것이 더욱 바람직하다. 즉 상기 분산매의 pH는 3 내지 10인 것으로 상술한 조건에서 실리카가 분산매에 효과적으로 분산된 것을 확인하였다.
- [0047] 상기 실리카 콜로이드는 상기 탄소복합소재의 단위 면적 당 0.5 내지 3.0 mg/cm<sup>2</sup>가 될 수 있도록 도포하는 것이 바람직하며, 상기 범위 내에서 실리카 콜로이드가 도포되는 경우, 양 소재를 분리시켰을 때 탄소복합소재의 파손이 최소화되는 것을 확인하였다. 상기 실리카 콜로이드가 0.5 mg/cm<sup>2</sup> 미만으로 도포되거나 3.0 mg/cm<sup>2</sup>을 초과



하여 도포되는 경우에는 양 소재를 분리시켰을 때 탄소계 소재를 파손시킬 수 있어 바람직하지 않다.

[0048] 그리고 본 발명에서 가장 중요한 공정은 실리카를 도포한 후 건조시키는 공정이다. 상기 건조 공정은 상기 분산매가 40 내지 100%로 포화된 공기 조건에서 수행되는 것으로, 상기 조건에서 건조시킬 경우, 도포된 실리카 입자 간의 뭉침(aggregation) 현상이 발생하지 않고 균일하게 단층(monolayer)으로 형성되는 것을 확인하였다. 그러나 반대로 공기 중에 상기 용매를 포화시키지 않거나, 또는 다른 공기 조건에서 건조시킬 경우에는 실리카 입자의 뭉침 현상이 반드시 발생하게 되어 이는 양 소재간의 결합력을 현저히 저하시키는 문제점이 발생하는 것을 확인하였다.

[0049] 상기 콜로이드 상태의 실리카를 도포하는 방법으로는 딥 코팅법(dip coating), 드롭 코팅법(drop coating), 및 슬롯 다이코팅법(slot die coating) 중에서 선택된 어느 하나 이상의 방법을 통해 수행되는 것이 바람직하다.

[0050] 상기 (C) 단계는 상기 (B) 단계를 통해 실리카가 도포된 탄소복합소재에 접착제를 도포하는 단계이다. 상기 접착제는 아크릴 수지, 에폭시 수지 및 우레탄 수지 중에서 선택된 1종 이상을 사용하는 것이 바람직하다.

[0051] 상기 접착제중 2액형을 사용하는 경우에는 재현성을 위하여 두 액의 동일한 혼합비와 믹서환경이 필요하기 때문에, 수동건 및 100mm 이상 길이의 믹서기를 이용하여 믹서한 후에 사용하는 것이 바람직하다.

[0052] 상기 (D) 단계는 상기 (C) 단계를 통해 접착제가 도포된 탄소복합소재에 이중소재를 고정시키는 단계로, 필요에 따라 테이프 타입의 접착제를 추가로 사용하여 탄소복합소재와 이중소재를 고정시킬 수도 있다.

[0053] 상기 (D) 단계는 양 소재 간을 고정시킨 후 가압하여 더욱 견고하게 고정시킬 수도 있으며, 이때 가압은 작업자의 압력 혹은 유압(2-10 atm)을 이용한 등방 가압으로 수행될 수 있다.

[0054] 상기 열처리는 접착제를 경화시켜 탄소복합소재와 이중소재를 최종적으로 결합시키는 단계이다. 상기 열처리 조건은 사용한 접착제의 종류에 따라서 달라질 수 있으므로 이에 제한되는 것은 아니다.

[0055] 다만, 에폭시 계열의 접착제를 사용하는 경우에는 100 내지 250 °C의 온도에서 1 내지 100분 동안 수행되는 제1 열처리 후, 10 내지 50 °C 온도를 상승시켜 10 내지 30분 동안 수행되는 제2 열처리하는 것이 바람직한데, 다른 조건과는 달리 상기 조건에서 양 소재의 결합력이 가장 뛰어났으며, 장시간 후에도 초기 결합력을 유지하는 것을 확인하였다.

[0056] 특히, 상기 (B) 단계에서 ① 농도가 0.1 내지 20 w/v%인 실리카 분산액을 도포하고, ② 그리고 나서 그 분산매가 40 내지 100%로 포화된 공기조건에서 건조시키는 공정을 추가로 수행하며, ③ 건조 후 접착제가 0.001 내지 0.1 mm 두께로 도포된 경우, 특히하게도 접착부 단위면적당 특정한 실리카의 농도(mg/cm<sup>2</sup>)에서 최대의 접착강도와 최소의 파손면적을 동시에 보이는 반면, 만일 위 3가지 조건 중 어느 하나라도 충족되지 않는 경우에는 최대의 접착강도를 보이는 단위면적당 특정한 실리카의 농도값과 최소의 파손면적을 보이는 단위면적당 특정한 실리카의 농도값이 서로 다르게 관찰됨을 확인하였다.

[0057] 이하에서 실시예 등을 통해 본 발명을 더욱 상세히 설명하고자 하며, 다만 이하에 실시예 등에 의해 본 발명의 범위와 내용이 축소되거나 제한되어 해석될 수 없다. 또한, 이하의 실시예를 포함한 본 발명의 개시 내용에 기초한다면, 구체적으로 실험 결과가 제시되지 않은 본 발명을 통상의 기술자가 용이하게 실시할 수 있음은 명백한 것이며, 이러한 변형 및 수정이 첨부된 특허청구범위에 속하는 것도 당연하다.

[0058] 또한 이하에서 제시되는 실험 결과는 상기 실시예 및 비교예의 대표적인 실험 결과만을 기재한 것이며, 아래에서 명시적으로 제시하지 않은 본 발명의 여러 구현예의 각각의 효과는 해당 부분에서 구체적으로 기재하도록 한다.

[0059] **(실시예: 탄소계 소재가 결합된 복합소재의 제조)**

[0060] 1) CFRP 및 알루미늄의 전처리

[0061] 두께가 각각 2mm인 CFRP(T-700 grade [(0/±45/90)<sub>2</sub>]<sub>s</sub>, C-ASK Co.)와 알루미늄(2024 T-4, S.T. Co.)의 접착 강도와 실리카 용액의 효율적인 흡수를 위하여, 상기 CFRP 및 알루미늄의 가로와 세로가 각각 12.5 mm인 접착부 표면을 사포(sandpaper) 작업을 실시하였다. 상기 사포 작업은 모든 방향으로 균일한 표면처리를 위하여 수직방

향, 수평방향, 우측 사선방향, 좌측 사선방향으로 각각 5 내지 15회 골고루 작업하였으며, 사용한 사포의 거칠기는 100-1000인 것을 사용하였다. 사포 작업이 끝난 후에 아세톤, DCM 및 알코올의 세척 용매를 사용하여 사포 처리된 면을 깨끗이 세척하고 건조하였다.

[0062] 2) 실리카 콜로이드 용액의 제조

[0063] 200 내지 400 nm의 입자 크기를 갖는 실리카 분말을 디메틸포름아마이드(Dimethylformamide, DMF)의 용매에 분산시켜 실리카 입자가 고르게 분산된 실리카 용액을 제조하였다.

[0064] 상기 용매 내에 실리카 입자를 고르게 분산시키기 위하여 초음파 분쇄기(sonicator)를 이용하여 약 10분 동안 실시하였고, 1, 2, 3, 4, 5, 6 %의 농도로 제조하였다. 제조된 콜로이드 용액은 도 2에서 보는 바와 같이 낮은 농도에서는 투명색을 띄지만 농도가 높을수록 옅은 회색을 띄는 것을 확인하였다.

[0065] 3) 실리카를 이용한 CFRP 및 알루미늄의 표면 처리

[0066] 먼저, 가로와 세로가 각각 12.5 mm인 CFRP의 표면(이중소재가 접촉되는 부위)에 상기 2)를 통해 제조된 실리카 콜로이드 용액 8  $\mu$ l를 드롭 코팅(drop coating)법으로 처리하였다. 그리고 DMF 용매로 공기 조건을 40% 이상으로 포화시킨 후에 건조시켜 뭉침 현상 없이 고른 실리카가 코팅된 CFRP 표면을 얻었다.

[0067] 4) 접착제 도포 및 경화

[0068] 상기 3) 공정을 통해 실리카가 코팅된 CFRP 표면에 액상의 에폭시 접착제를 사용하여 0.005-0.05 mm의 두께로 도포하고, 알루미늄을 고정시킨 다음 테이프 타입의 접착제를 접착 부위 크기에 맞게 잘라 붙였다. 그리고, 하기 표 1에서 보는 바와 같이, 에폭시 접착제 종류에 따라 경화조건을 상이하게 실시하여 경화시켰으며, 최종적으로 CFRP와 알루미늄 소재가 결합된 이중소재를 제조하였다.

표 1

에폭시 접착제의 종류	1차 경화		2차 경화	
	온도	시간	온도	시간
Araldite	150 $^{\circ}$ C	30 min	180 $^{\circ}$ C	10 min
LF-501	175 $^{\circ}$ C	20 min	200 $^{\circ}$ C	10 min

[0070] (시험예 1: 실리카 입자의 분포 확인)

[0071] CFRP 접착 부위에서의 실리카 입자 분포 형상을 확인하기 위하여 주사형 전자 현미경(Field emission scanning electron microscope, FE-SEM)을 통해 분석하였으며, 그 결과를 도 4에 나타내었다.

[0072] 도 4를 참조하면, 사포(sandpaper)로 처리된 접착 부위는 매우 거친 표면을 가짐을 확인할 수 있었고, 300nm 정도의 균일한 크기의 원형 나노 입자들이 비교적 단층(monolayer)을 이루며 뭉침 현상 없이 잘 분산된 모습을 볼 수 있었다. 실리카 입자의 분산을 위해서는 화학 및 전기화학적 처리 등이 수반되는 것이 보통이지만 본 기술에서는 추가적인 처리 공정 없이도 충분히 분산시킬 수 있음을 보여준다. 이러한 CFRP 표면에서의 실리카 분말의 균일한 단층 분산은 10분 이내의 초음파 분쇄(sonication)에 의한 용매 내에서의 실리카 분산과 공기의 중 건조 조건의 최적화(분산매로 40%이상 포화된 공기조건)의 결과이다.

[0073] (시험예 2: CFRP와 금속 간의 접착 강도 및 CFRP의 손상여부 확인)

[0074] 실시예를 통해 제조된 이중소재의 접착 강도 및 CFRP의 손상여부를 확인하기 위하여, CFRP 접착 부위에서 발생하는 파단을 관찰하고 그에 따른 접착 강도를 측정하였으며, 그 결과를 도 5 내지 7에 나타내었다.

[0075] 먼저, 도 5를 참조하면, Araldite 2011-A/B 접착제(b)와 LF-501 접착제(a)에서는 각각 2.5mg/cm<sup>2</sup>, 1.0mg/cm<sup>2</sup>의 실리카 분말 농도에서 가장 강한 접착 강도를 보이는 것을 볼 수 있다.

[0076] 더욱 흥미로운 점은 접착 강도 실험 이후 접착 부위의 파단 경향성이다. 도 5의 왼쪽 측은 실리카 분말의 농도에 따른 접착 강도를 나타내고(검은색), 오른쪽 측은 농도에 따른 CFRP의 파손 면적을 나타내고 있다(붉은색). CFRP의 파손 면적은 기계적 실험 후 파손된 CFRP의 면적을 정량화 한 것으로, lab shear test 후 알루미늄 표면에 파손되어 붙어있는 CFRP의 면적으로 계산되었다. 파손이 하나도 안된 경우를 0%로 접착 표면이 완전히 파손

된 경우 100%로 정량화 하였다. 따라서, 도 5의 결과는 실리카 분말의 농도가 최적화 되었을 때, 접착 강도는 최대가 되고(검은색) CFRP 파손은 억제됨을(붉은색) 잘 보여주고 있다.

[0077] 도 5에서 결정된 최적의 실리카 분말 농도를 활용하여 CFRP 접착 부위를 처리한 결과, 기존의 접착 부위에서는 CFRP의 심한 손상이 일어났던 것과는 다르게, CFRP의 손상이 현저히 줄어들거나 거의 일어나지 않았으며 이에 따라 접착 강도 역시 아무 처리하지 않은 CFRP의 접착 강도에 비해 20% 정도 상승함을 볼 수 있었다. 두 가지 서로 다른 타입의 접착제에서도 같은 경향을 보이는 것에 비추어, 접착제 별로 최적의 실리카 나노 입자 농도만 결정하여 활용한다면 실리카 분말은 접착 강도를 향상시켜 줌과 동시에 분리(debonding)시 CFRP를 보호하여 손상을 막아준다는 결과를 얻을 수 있다.(도 5, 6 참조)

[0078] 즉, CFRP 접착 부위의 파단 형태를 SEM을 통해 관찰한 결과, 아무 처리 하지 않은 CFRP에서는 내부 탄소 섬유들의 부러짐을 관찰할 수 있는 반면(CFRP의 손상), 실리카 분말을 표면 처리한 CFRP에서는 탄소 섬유의 부러짐 같은 CFRP의 손상이 없이 접착제 부위의 파손만을 확인할 수 있다. 이를 통해, 분리된 이종소재는 접착제의 제거를 통해 온전한 CFRP 재활용이 가능함을 알 수 있다.(도 7 참조)

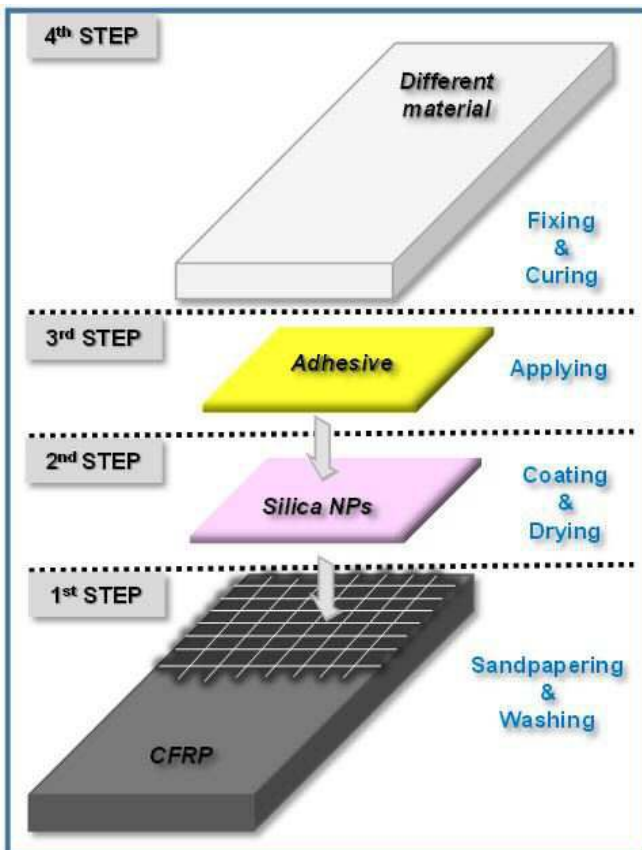
[0079] 상술한 결과들을 통해 알 수 있듯이, 추가적인 처리절차가 요구되지 않는 간단한 방법으로 실리카 입자를 CFRP 접착 부위에 균일하게 단층으로 분산시킬 수 있으며, 이러한 처리를 통해 분리(debonding)시 CFRP의 파손을 막고 동시에 접착 강도 향상을 꾀할 수 있다. 이는 결국 CFRP 수리 및 재사용(re-use)을 가능하게 하여 재활용(recycling)으로 인한 에너지, 환경, 그리고 비용 문제 개선에 기여할 수 있음을 보여준다.

[0080] 따라서, 본 발명의 여러 구현예에 따른 탄소복합소재와 이종소재의 접착 및 분리 제어기술은 탄소복합소재와 결합되는 금속 등의 이종소재와의 접착 강도를 향상시키는데 현저한 효과를 나타낸다.

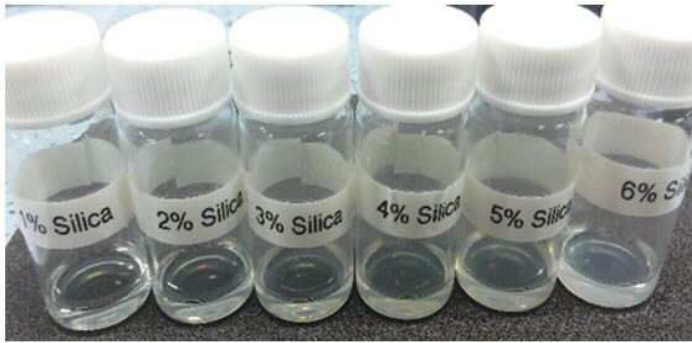
[0081] 또한, 상기 접합체를 분리함에 있어서, 양 소재 간의 어떠한 손상 없이도 분리가 용이한 효과를 나타낸다.

**도면**

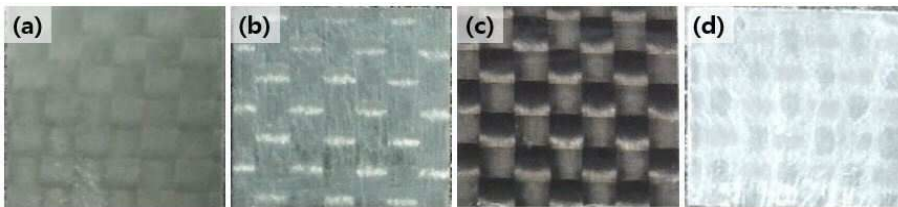
**도면1**



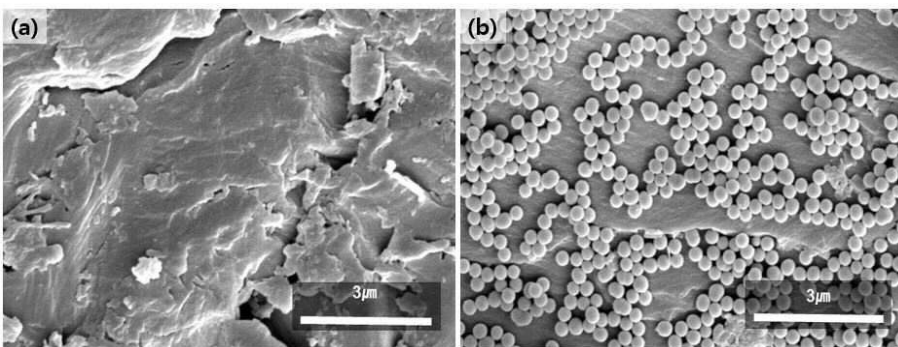
도면2



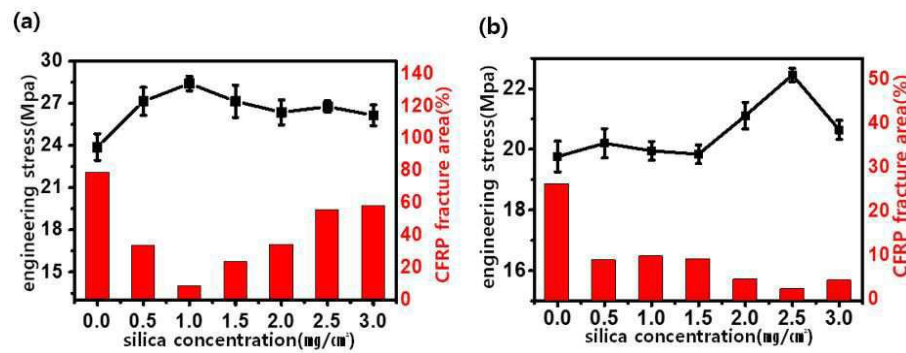
도면3



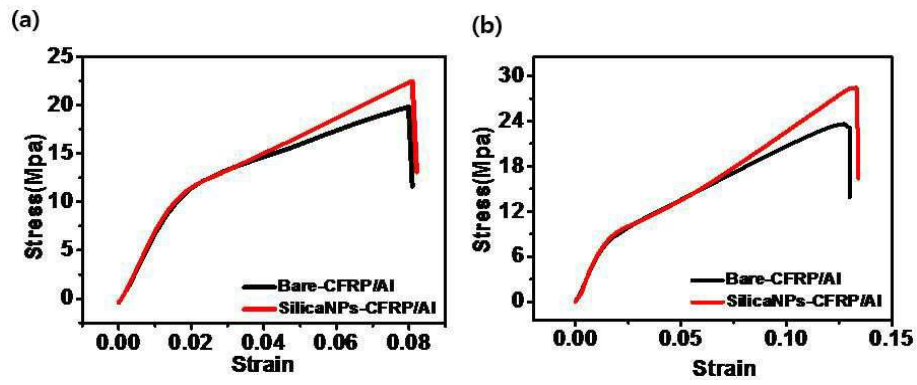
도면4



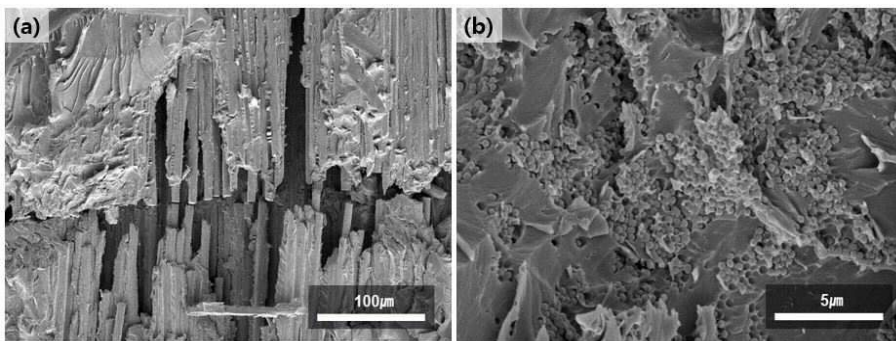
도면5



도면6



도면7



【심사관 직권보정사항】

【직권보정 1】

【보정항목】 청구범위

【보정세부항목】 청구항 7

【변경전】

상기 실리카 콜로이드 분산액

【변경후】

상기 실리카를 분산매에 분산시킨 콜로이드 분산액