

The effect of various types of silane coupling agents on the bond strength and tensile strength of carbon fiber

Woo Sung Yum and Yong-Sik Chu[†]

Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology, Carbon Neutral Materials Center, Jinju 52851, Korea

(Received October 8, 2024)

(Revised October 25, 2024)

(Accepted November 4, 2024)

Abstract In this study, various silane coupling agents were applied to improve the bonding strength between carbon fiber and epoxy-based resins, and the resulting changes in mechanical strength were examined. In addition, the presence or absence of sizing removal on the carbon fibers was used as an experimental variable to analyze the effects of the resin. The bonding strength and tensile strength of carbon fibers varied significantly depending on the presence or absence of sizing removal and the type of silane coupling agent used. Based on a comprehensive analysis of the experimental results, 3GT and 3TPM were determined to be the most suitable silane coupling agents for improving both adhesion and tensile strength.

Key words Fiber reinforced plastic, Carbon fiber, Silane coupling agent, Epoxy resin, Tensile strength

다양한 종류의 실란 커플링제가 탄소섬유의 부착 강도 및 인장강도에 미치는 영향

염우성, 추용식[†]

한국세라믹기술원 탄소중립소재센터, 진주, 52851

(2024년 10월 8일 접수)

(2024년 10월 25일 심사완료)

(2024년 11월 4일 게재확정)

요약 본 연구에서는 섬유 강화 플라스틱의 주재료인 탄소섬유와 에폭시 계열 수지의 결합력을 개선하기 위해 다양한 종류의 실란 커플링제를 적용한 뒤 그에 따른 부착 강도 및 인장강도 변화를 확인하였다. 또한, 탄소섬유의 사이징 제거 유무를 실험 변수로 두어 수지가 미치는 영향에 대해 분석하였다. 탄소섬유 사이징 제거 유무 및 실란 커플링제 종류에 따라 탄소섬유의 부착 강도 및 인장강도 경향은 상이하게 측정되었다. 두 실험 결과를 종합적으로 고려하였을 때 부착 강도 및 인장강도 개선에 가장 적합한 실란 커플링제는 3GT 및 3TPM인 것으로 판단되었다.

1. 서론

철근 콘크리트는 건축 및 토목 분야에서 가장 많이 사용되는 재료이며, 철근은 구조물의 인장응력을 보강하는 중요한 역할을 한다[1]. 하지만 토목 및 건축 구조물이 해양 환경이나 열악한 환경에 장기간 노출될 경우, 콘크리트 내부의 철근에는 부식이 발생하며 이는 구조물의 내구성을 저하시키고 사용자의 안전성을 위협한다[2]. 또한, 최근 지구온난화로 인해 폭우, 폭염, 한파 등과 같은 이상 기후의 발생 빈도가 높아짐에 따라 구조물들의 내

구성이 급격하게 떨어지고 있으므로 이에 대한 대책이 필요한 상황이다[3].

한편, 주요 선진국에서는 토목 및 건축 구조물의 공용 수명 및 내구성을 증진하는 방안으로 철근을 대체할 수 있는 섬유 강화 플라스틱(Fiber Reinforced Plastic)을 개발하고 있다[4]. 섬유 강화 플라스틱은 철근과 달리 부식이 발생하지 않아 구조물의 내구성을 장기간 유지할 수 있는 장점이 있으며, 철근에 비해 인장강도 및 탄성 계수가 높으며 무게가 가볍다는 특징이 있다[5]. 섬유 강화 플라스틱의 주재료는 섬유와 수지인데, 원재료인 섬유(탄소, 유리, 현무암 등)의 종류, 수지의 계열(에폭시, 비스페놀, 비닐, 폴리에스터 등) 및 사용량, 그리고 제조 방법에 따라 물리적 특성이 크게 변한다[6]. 섬유 강화

[†]Corresponding author
E-mail: yschu@kicet.re.kr

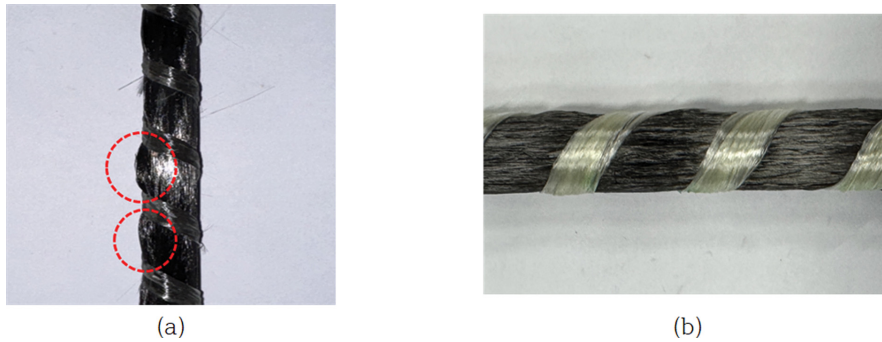


Fig. 1. Case of improperly manufactured FRP: (a) FRP abnormal molding and (b) Insufficient surface coating due to resin.

플라스틱의 인장강도 및 탄성계수를 결정하는 주요한 인자는 사용되는 섬유의 고유 물성이라고 알려져 있다. 하지만, Fig. 1과 같이 점착력이 부족한 수지가 사용되면 표면 성형이 제대로 이루어지지 않거나, 충분한 표면 코팅 등이 되지 않아 주재료인 섬유와 수지 간의 일체 거동이 이루어지지 않으며, 나아가 섬유 강화 보강근의 물성을 저하하기도 한다[7].

따라서, 많은 연구자들이 섬유 강화 플라스틱의 섬유와 수지의 점착력을 개선하여 일체 거동을 유도하기 위한 많은 연구를 수행하고 있다[8]. 하지만 기존 연구 결과에는 수지의 단독 사용으로는 섬유 강화 플라스틱의 일체 거동을 하기에는 부족하다는 연구 보고가 있으며 [9-11], 이에 섬유와 수지 간의 점착력을 개선할 수 있는 실란 커플링제(Silane Coupling agent) 적용 연구를 다수 수행하고 있다[12-13]. 따라서 본 연구에서는 섬유 강화 플라스틱에 가장 많이 사용되는 탄소섬유와 에폭시 수지에 다양한 종류의 실란 커플링제를 적용한 뒤 그에 따른 부착 강도 및 인장강도 개선 효과를 확인하였다. 이 외에도 탄소섬유에 존재하는 사이징(Sizing) 제거 유무에 따른 재료의 강도 변화도 확인하였다.

2. 원재료 및 실험 방법

본 연구에서 사용된 탄소섬유는 국내 H사의 24K 탄소섬유를 사용하였으며, 수지는 국내 K사에서 제조한 에폭시 계열의 수지를 사용하였다. 탄소섬유는 섬유 다발 간의 마찰에 의해 발생하는 보풀을 방지하고, 나아가 수지와의 결합력 향상 등을 위해 섬유 표면에 사이징을 처리한 뒤 섬유를 판매한다. 즉, 사이징은 수만 가닥의 섬유의 엉킴 현상 등을 방지하기 위해 섬유 표면에 코팅을 하는 것을 의미한다. 하지만 사이징의 유무에 따라 수지나 실란 커플링제가 미치는 영향이 상이하다고 알려져 있으므로, 탄소섬유의 사이징 제거 유무에 따른 영향을 확인하였다. 탄소섬유의 사이징을 제거하기 위해 탄소섬유를 24시간 동안 아세톤에 침지한 뒤 60°C의 오븐

Table 1
The Silane coupling agent used in this study

Abbreviation	Types of Silane Coupling Agents
3GT	3-(Glycidyloxypropyl)trimethoxysilane
3TPM	3-(trimethoxysilyl)propyl methacrylate
3AT	(3-Aminopropyl)triethoxysilane
3T	Trimethoxymethylsilane
B3TP	Bis-[3-(trimethoxysilyl)propyl]amine

에서 30분간 건조하였다. 에폭시 수지는 주재와 경화제로 구분되며, 사전 연구를 통해 이들의 비율을 1:1.1로 설정하였다. 또한, 본 연구에서 사용된 실란 커플링제는 Table 1과 같이 총 5가지 종류이며, 국외 S사에서 구매하여 사용하였다.

본 연구에서는 탄소섬유의 사이징 제거 여부, 실란 커플링제 종류 및 첨가량을 실험 변수로 하여 Table 2와 같이 배합표를 설계하였다. 배합비는 크게 탄소섬유의 사이징 유무 따라 그룹이 구분되며, 커플링제 종류 및 약어를 고려하여 샘플명을 명명하였다. 또한, 실란 커플링제는 기존 연구결과를 조사하여 수지 중량 대비 1%를 치환하였다[12,13].

부착 강도 측정을 위한 샘플을 제작하기 위해 10 cm × 10 cm 크기의 탄소섬유 시트에 수지를 핸드레이 방법으로 도포한 뒤 적층(4 mm)시켜가며 샘플을 제작하였으며, 샘플 제작에는 총 6장의 탄소섬유 시트가 사용되었다. 적층된 탄소섬유 시트는 오토클레이브 양생기에 5 Bar의 압력을 가하여 제작되었으며, 총 양생 시간은 3시간이었다. 양생 온도의 경우 초기 30분간은 상온에서 150°C로 승온한 뒤 2시간 동안 온도를 150°C를 유지하였으며, 나머지 30분 동안 상온으로 온도를 낮추었다. 경화된 샘플은 ASTM D 790에서 제시하는 샘플 크기로 절단하여 만능 인장 시험기를 이용하여 부착 강도를 측정하였다.

인장강도 샘플 제작 과정은 부착 강도 샘플 제작 과정과 동일하지만 인장강도의 경우 샘플의 크기(폭 15 mm, 길이 250 mm)가 상이하므로 30 cm × 30 cm 크기의 탄소섬유 시트가 사용되었으며 그 외의 제작 방법은 동

Table 2
Mixture proportions

Group	Sample name	Ratio of Resin to Silane Coupling Agent (wt%)			Sum
		Epoxy	Hardener	Silane Coupling Agent	
Sizing Group	CS-Control	47.62	52.38	0	100
	CS-3GT	47.14	51.86	1	
	CS-3TPM				
	CS-3AT				
	CS-3T				
	CS-B3TP				
Non-Sizing Group	NCS-Control	47.62	52.38	0	
	NCS-3GT	47.14	51.86	1	
	NCS-3TPM				
	NCS-3AT				
	NCS-3T				
	NCS-B3TP				

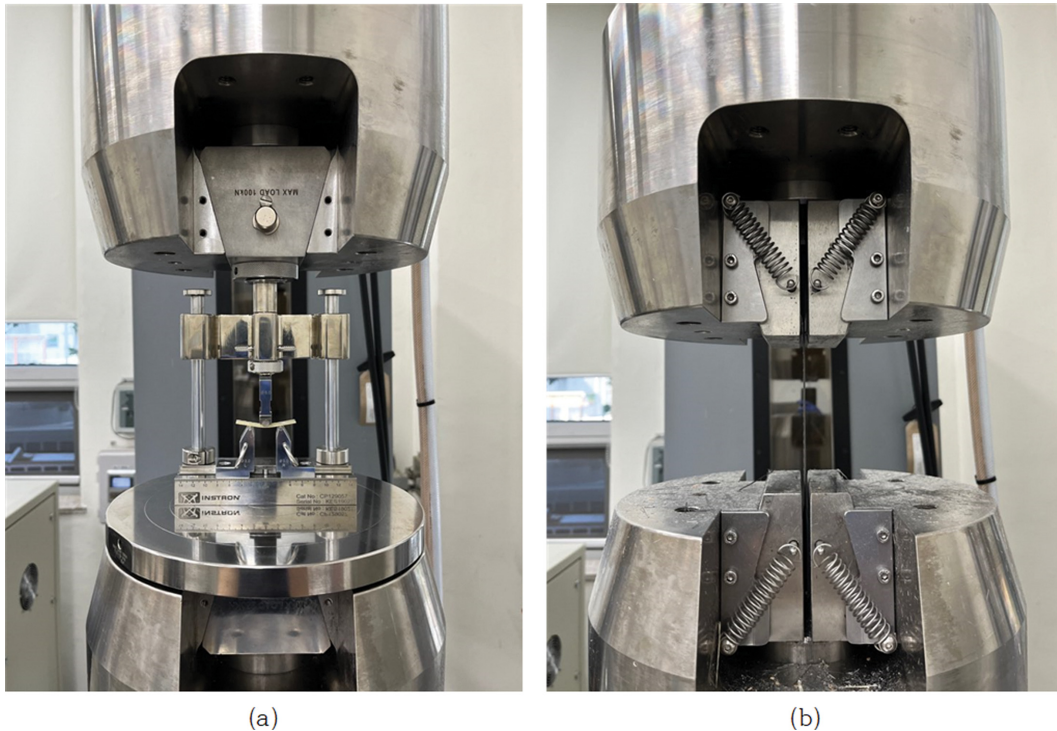


Fig. 2. Photos of mechanical properties testing: (a) Bond strength and (b) Tensile strength.

일하였다. 인장강도의 경우 ASTM D 3039에서 제시한 절차에 따라 시험이 수행되었다.

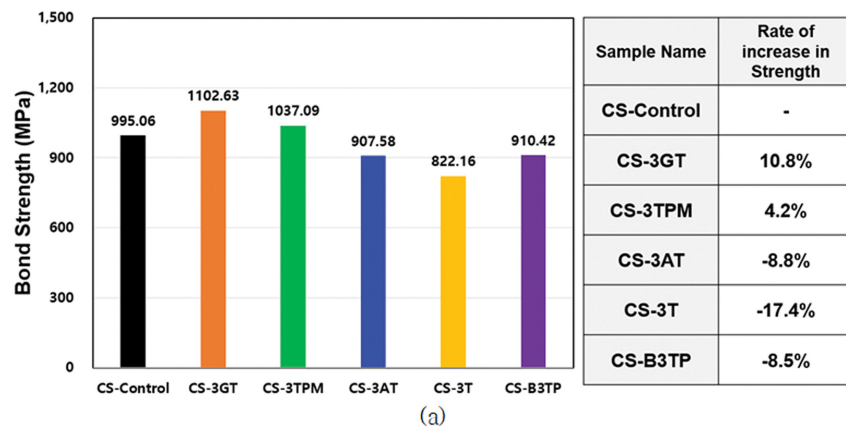
3. 실험 결과

3.1. 부착 강도 측정 결과

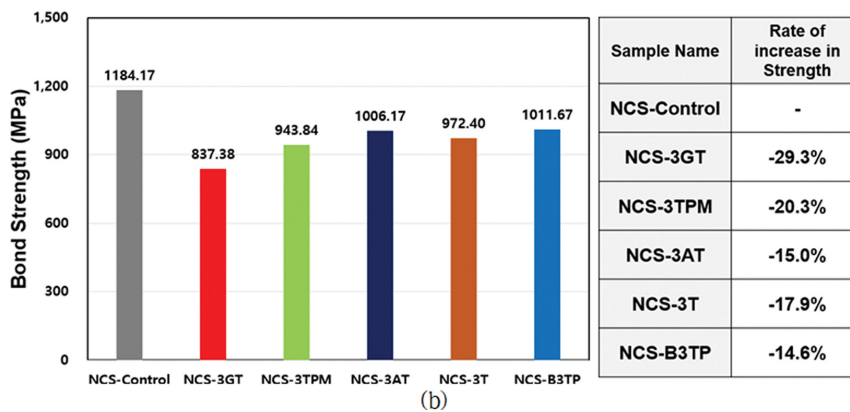
탄소섬유의 사이징 제거 여부 및 실란 커플링제 종류에 따른 부착 강도 측정 결과는 Fig. 3과 같다. 먼저 사

이징이 존재하는 경우 CS-3GT와 CS-3TPM은 각각 약 11% 및 4%의 부착 강도 증진율이 확인되었으나, 그 외의 경우에는 모두 부착 강도 저하가 확인되었다. 이를 통해 기존 에폭시 계열의 수지와 상호 보완 작용을 하여 강도를 증진시키는 실란 커플링제는 3GT 및 3TPM으로 판단되었으며, 특히 3GT는 부착 강도 증진 측면에서 가장 효과적인 것을 확인할 수 있었다[14].

한편, 사이징을 제거한 그룹은 사이징이 있는 그룹과는 전혀 다른 부착 강도 결과가 확인되었다. 먼저, 기준군 샘플(CS-Control 및 NCS-Control)의 경우, 사이징을

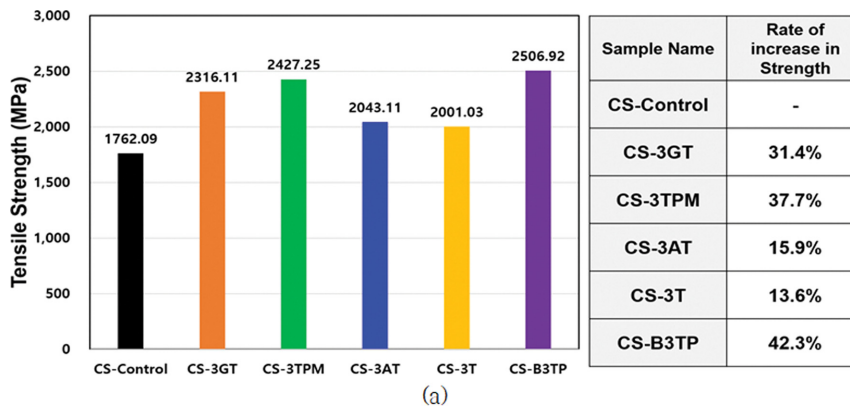


(a)

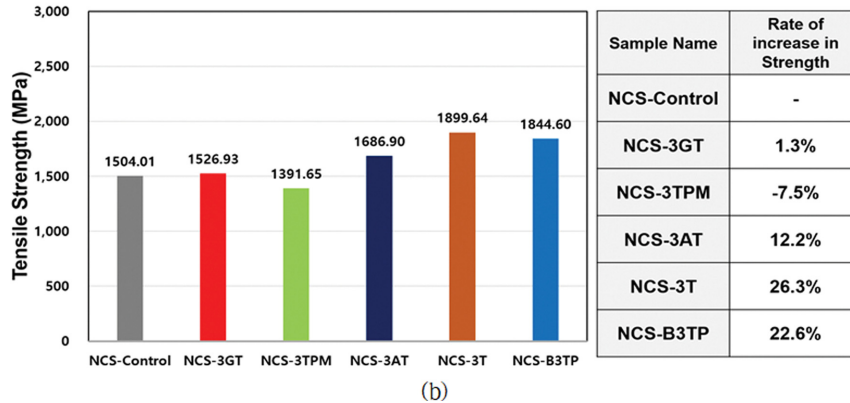


(b)

Fig. 3. Results of bond strength tests: (a) Sizing group and (b) non-sizing group.



(a)



(b)

Fig. 4. Results of tensile strength tests: (a) sizing group and (b) non-sizing group.

제거할 경우 상대적으로 더 높은 부착 강도가 측정되었는데 이를 통해 탄소섬유와 수지를 단독으로 사용할 경우 사이징의 존재가 부착 강도를 일부 저하시킨다는 것을 확인할 수 있었다. 또한, 사이징을 제거한 모든 경우에서 실란 커플링제를 적용할 경우 NCS-Control 보다 낮은 부착 강도가 측정되어 실란 커플링제 적용에 따른 부착 강도 개선 효과는 없는 것으로 확인되었다. 한편, 사이징이 제거된 그룹에서 실란 커플링제가 첨가된 샘플들이 기준군인 NCS-Control보다 낮은 부착 강도가 측정되었으나, NCS-3AT, NCS-3T, NCS-B3TP 샘플들이 CS-3GT 및 CS-3TPM과 유사한 수준의 부착 강도가 측정되어 특정 물성을 확보하기 위한 사용에는 적용될 수 있을 것이라고 판단되었다.

3.2. 인장강도 측정 결과

탄소섬유 사이징 유무 및 실란 커플링제 종류에 따른 인장강도 측정 결과는 Fig. 4와 같다. 먼저 사이징이 존재하는 그룹의 경우, 모든 샘플이 실란 커플링제가 적용됨에 따라 인장강도 개선 효과가 확인되었다. 가장 높은 인장강도 상승률은 CS-B3TP이며, CS-3GT 및 CS-3TPM은 약 30% 수준의 상승률을 보였다. 사이징이 제거된 그룹에서는 NCS-3TPM을 제외한 모든 샘플에서 인장강도 상승효과가 관측되었으며 가장 높은 인장강도 상승률은 NCS-3T였다. 부착 강도 결과와 동일하게 탄소섬유의 사이징 유무 및 실란 커플링제 종류에 따라 인장강도 개선율이 상이하였으며, 실험 변수에 따른 강도 개선 효과를 고려하여 FRP 제조 등에 활용해야 할 것으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 섬유 강화 플라스틱에 주로 사용되는 탄소섬유와 에폭시 수지의 일체 거동을 위해 다양한 종류의 실란 커플링제를 적용한 뒤 그에 따른 부착강도 및 인장강도를 측정하였다. 탄소섬유의 사이징 유무 및 실란 커플링제의 종류에 따라 상이한 결과가 측정되었으며, 그에 따른 연구 결과는 다음과 같다.

1) 부착 강도 실험 결과, 탄소섬유의 사이징 유무 및 실란 커플링제 종류에 따라 다른 부착 강도 경향이 확인되었다. 사이징이 제거되지 않은 탄소섬유 그룹에서는 3GT 및 3TPM을 적용할 경우 부착 강도 개선 효과가 확인되었으나, 그 외의 경우에는 오히려 강도 저하가 확인되었다.

2) 사이징이 제거된 그룹의 경우 실란 커플링제를 적용하여도 부착 강도 개선 효과는 확인되지 않았다. 다만,

절대적인 부착 강도 수치 측면에서는 일부 샘플들이 사이징이 존재하는 그룹의 샘플들 보다 높은 부착 강도가 측정되어, 추후 작업성이나 경제성 등과 같은 특수 목적에는 활용이 가능할 것으로 판단되었다.

3) 인장 강도 측정 결과 사이징이 존재하는 탄소섬유에 실란 커플링제가 적용될 경우 모두 강도 증진 효과가 확인되었으며, 가장 높은 인장강도가 측정된 샘플은 CS-B3TP였다.

4) 사이징이 제거된 샘플의 경우에도 NCS-3TPM을 제외하고 모든 샘플에서 실란 커플링제가 인장강도 개선에 효과가 있었으며, 가장 높은 인장강도 개선율을 보인 것은 NCS-3T였다.

5) 부착 강도 및 인장강도 측정 결과를 종합적으로 판단한 결과, CS-3GT 및 CS-3TPM은 부착 강도 및 인장강도 모두에서 증진 효과가 확인되어 탄소섬유와 에폭시 계열의 수지의 일체거동 증진을 위해서는 CS-3GT 및 CS-3TPM의 사용이 가장 적합할 것으로 판단되었다.

감사의 글

본 연구는 국토교통부 국토교통과학기술진흥원 탄소 고분자 부식 제로 철근대체재 기술개발 사업 연구비 지원(RS-2021-KA163381)을 통해 수행되었습니다. 연구비 지원에 감사드립니다.

References

- [1] P.K. Mehta and P. Menteiro, "Concrete: microstructure, properties and materials", 4th ed., Mac Graw Hill J. Mater. 14 (2021) 2709.
- [2] C.E. Reynolds, J.C. Steedman and A.J. Threlfall "Reinforced concrete designer's handbook", CRC Press (2007).
- [3] K. Yasuhara, S. Murakami, N. Mimura, H. Komine and J. Recio, "Influence of global warming on coastal infrastructural instability", Sustainability Science 2 (2007) 13.
- [4] Y.M. Amran, R. Alyousef, R.S. Rashid, H. Alabduljabbar and C.C. Hung, "Properties and applications of FRP in strengthening RC structures: A review", Structures. Vol. 16 (Elsevier, 2018) p. 208.
- [5] L. Van Den Eide, L. Zhao and F. Seible, "Use of FRP composites in civil structural applications", Constr. Build. Mater. 17 (2003) 389.
- [6] N.I. Kim, D.-Y. Kwon and Y.-S. Chu, "Analysis of correlation between flexural strength and pore characteristics on CFRP rebar as fabrication method", Compos. Res. 35 (2022) 328.
- [7] J. Shrestha, T. Ueda and D. Zhang, "Durability of FRP concrete bonds and its constituent properties under the influence of moisture conditions", J. Mater. Civil. Eng. 27 (2015) A4014009.

- [8] G. Taglieri, V. Daniele, G.D. Re and R. Volpe, "A new and original method to produce $\text{Ca}(\text{OH})_2$ nanoparticles by using an anion exchange resin", *Adv. Nano Res.* 4 (2015) 17.
- [9] Y. Li, X. Liu and J. Li, "Bond properties of FRP-concrete interface with nano-modified epoxy resin under wet-dry cycles", *KSCE J. Civil. Eng.* 21 (2017) 1379.
- [10] V.M. Karbhari, H. Niu and C. Sikorsky, "Review and comparison of fracture mechanics-based bond strength models for FRP-strengthened structures", *J. Reinf. Plast. Comp.* 25 (2006) 1757.
- [11] C. Czaderski, E. Martinelli, J. Michels and M. Motavalli, "Effect of curing conditions on strength development in an epoxy resin for structural strengthening", *Compos. Part B-Eng.* 43 (2012) 398.
- [12] P.G. Pape and E.P. Plueddemann, "Methods for improving the performance of silane coupling agents", *J. Adhes. Sci. Technol.* 5 (1991) 831.
- [13] H.F. Wu, D.W. Dwight and N.T. Huff, "Effects of silane coupling agents on the interphase and performance of glass-fiber-reinforced polymer composites", *Compos. Sci. and Technol.* 57 (1997) 975.
- [14] S. Choi, S. Maul, A. Stewart, H.R. Hamilton and E.P. Douglas, "Effect of silane coupling agent on the durability of epoxy adhesion for structural strengthening applications", *Polym. Eng. Sci.* 53 (2013) 283.