

表面硅烷改性和激光加工微倒钩结构对铝合金-CFRP 胶接接头性能的影响

张书平¹, 曹宇², 杨文峰², 蔡燕¹, 刘文文¹, 朱德华^{1*}, 张还^{3**}

¹温州大学激光加工机器人国际科技合作基地, 浙江 温州 325035;

²中国民用航空飞行学院航空工程学院, 四川 广汉 618307;

³温州大学激光与光电智能制造研究院, 浙江 温州 325105

摘要 碳纤维复合增强材料(CFRP)作为一种力学性能优异的新材料,已经成为航空和汽车轻量化领域的优选材料。因此实现CFRP与铝合金的高强度连接是提升CFRP与铝合金复合结构件整体强度的关键。提出了一种激光阶梯扫描制备倒钩阵列的方法,并将该方法与硅烷表面改性相结合,实现了铝合金与CFRP接头的高强度连接。实验结果表明:激光阶梯扫描制备的倒钩阵列大大增强了胶接界面之间的机械互锁效应,进而增强了接头强度。硅烷偶联剂改性后铝合金与黏结剂之间出现了硅烷过渡层,接头强度得到进一步提升。与砂纸粗化处理相比,激光处理后强度提升了24.6%,达到16.7 MPa,硅烷改性后强度得到进一步提升,达到17.4 MPa。

关键词 激光技术; 脉冲激光器; 激光材料加工; 碳纤维增强塑料; 胶接接头; 拉伸剪切强度

中图分类号 V261.8

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL221430

1 引言

随着现代社会的高速发展,航空航天、交通和航海等领域对材料的各种性能如疲劳性能、强度、抗损伤性能的要求越来越高。然而,单一的传统金属材料如铝合金、钛合金等无法满足这些要求。碳纤维增强塑料(CFRP)作为一种新型材料,具有重量轻、强度高、耐疲劳、耐腐蚀等优异性能,因此得到越来越广泛的应用。虽然CFRP的性能优异,但是在大型结构件中CFRP无法完全取代各种金属,因此,CFRP与金属的连接是不可避免的^[1-2]。传统的异种材料连接技术存在应力集中、部件过重等问题,而且钻孔操作会对连接件造成损伤^[3-5]。胶接作为一种简单且成本较低的连接方法,不仅可以避免传统连接方式带来的问题,同时胶接机制具有特殊的优势,例如胶接接头平整,密封性、绝缘性、防腐性优异,胶接接头的应力承载面积较大,因此接头的应力分布均匀,不易产生应力集中等^[6]。

胶接界面预处理对接头强度有着很大影响,表面处理可以有效去除CFRP与金属表面残留的颗粒污染物和油污,同时还能改变黏结表面的物理化学特性。目前,常用的金属表面处理工艺可分为两类。一种是

通过机械处理增加表面粗糙度,研究表明,铝合金的表面湿润性越好,黏结剂越容易在表面铺展^[7-8]。同时,机械处理会在铝合金表面形成不规则微结构,黏结剂流入其中会形成机械黏合,从而增强黏结强度,例如砂纸打磨、喷砂等方法^[9-10]。另一种是化学处理的方法,这种方法一方面可使黏结界面脱脂,另一方面化学腐蚀可以去除表面氧化层,并在黏结表面形成微纹理结构,也会使黏结强度提升^[11]。激光加工在环境保护、重复性、稳定性和表面改性方面具有显著优势,兼具机械表面处理和化学表面处理方法的优点,有望在未来成为有效的替代方法^[12-14]。

基于以上特点,国内外学者展开了很多研究。邹田春等^[15]研究了不同搭接长度对CFRP单搭接接头的拉伸性能及失效特征的影响,结果表明:随着搭接长度的增加,接头平均剪切强度先降低后趋于稳定,同时接头失效特征由剪切力主导向剥离力主导转变。杜婷婷等^[16]研究了纳秒激光表面处理对CFRP表面润湿性和胶接性能的影响,结果表明:与未处理的CFRP相比,激光处理后的CFRP表面粗糙度和润湿性明显增加,同时胶接强度提升了129.41%。刘一凡等^[17]研究了表面变宽度网格微结构对TC4与CFRP激光连接工艺以及连接界面的强化机理,结果表明:随着微结构宽度

收稿日期: 2022-11-18; 修回日期: 2022-11-21; 录用日期: 2023-02-08; 网络首发日期: 2023-02-18

基金项目: 浙江省自然科学基金重点项目(LD22E050001)、四川省科技计划(2021YFSY0025)、温州市科技项目(ZG2020038和H2020004)

通信作者: *zhu_556@163.com; **ayahuan1018@163.com

的增大,CFRP在TC4表面的接触情况由不润湿变成润湿,表面微织构显著提高了TC4表面对熔化CFRP的吸附能力,促进了界面的机械嵌合作用。微织构能增加界面接触面积并实现表面改性,促进CFRP与TC4在高温下发生化学连接,从而进一步提高接头强度。Özgür等^[18]研究了不同浓度的硅烷偶联剂下CFRP胶接接头强度的变化,结果表明:在硅烷偶联剂体积分数为3%的情况下,黏结强度达到17.27 MPa,并且在铝合金表面检测到了硅氧烷基团,这被认为是铝合金与环氧树脂之间形成了化学键。Xie等^[19]采用两步激光表面处理的方法改善CFRP单搭接接头的性能,结果表明:利用激光雕刻交叉沟槽结构可以有效提升连接强度,并且碳纤维的径向与轴向热导率是不同的,这导致不同方向上的激光扫描效果不一致。

在已知的研究中,激光表面处理和化学表面改性的方法都可以提升CFRP与铝合金接头的强度,但是目前国内外关于二者共同作用下CFRP与铝合金胶接接头的强度变化研究鲜有报道。因此,本文将激光表面处理和化学表面处理的方法结合起来,通过激光阶

梯扫描的方法在铝合金与CFRP表面上制备了倒钩阵列,并研究了倒钩阵列结构和硅烷偶联剂共同作用下铝合金与CFRP胶接接头的强度和失效类型。通过X射线光电子能谱(XPS)方法分析了硅烷偶联剂表面改性后胶接界面的成分变化。

2 实验材料与方法

2.1 实验材料与设备

本实验选用铝合金与碳纤维增强塑料作为黏结材料。铝合金尺寸为25 mm×100 mm×2 mm。CFRP是由碳纤维预浸料热压制成的,每层预浸料的厚度约为0.15 mm,采用0°/90°交叉编织铺设方法,尺寸为25 mm×100 mm×2 mm。胶黏剂主要成分为环氧树脂。

在本实验中铝合金与CFRP都需要进行表面处理,为了使结构可以更好啮合,使用同一台激光器进行处理。所用激光器的波长为1064 nm,最大输出功率为30 W,脉冲宽度为10 ps,重复频率可在50 kHz~1 MHz范围内调节。激光器及光路示意图如图1所示。

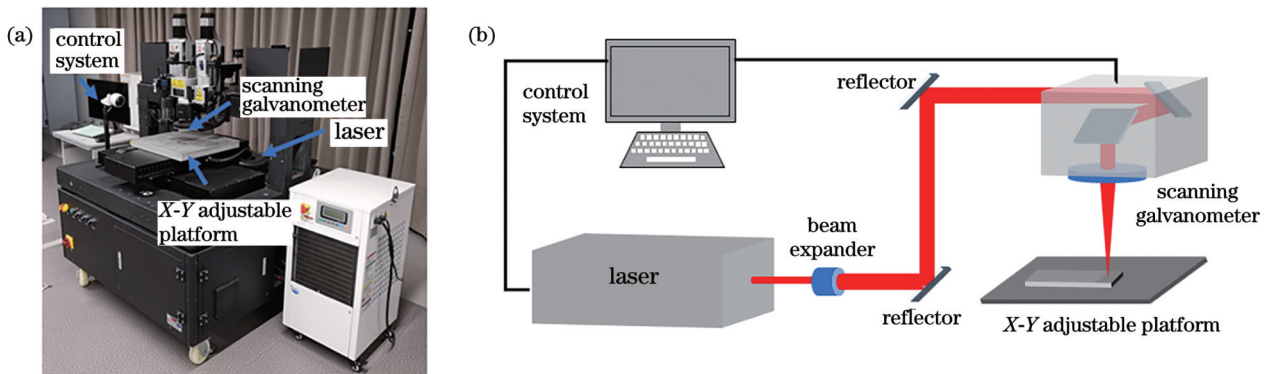


图1 激光器及光路示意图。(a)激光器实物图;(b)激光器光路示意图

Fig. 1 Schematics of laser and optical path. (a) Physical picture of laser; (b) schematic of laser optical path

2.2 实验过程

2.2.1 表面处理方法

本实验的目的是比较铝合金与CFRP表面经过不同方法处理后接头强度的变化,因此表面处理方法主要是以下三种:

第一种方法是利用砂纸对铝合金与CFRP表面进行打磨,增加表面粗糙度。砂纸打磨后在丙酮中对样品进行10 min的超声清洗,待样品自然干燥后进行下一步黏结操作。

第二种方法是用激光阶梯扫描的方法在铝合金与CFRP表面上制备出倒钩阵列结构,具体方法如图2所示,其中 L_s 为倒钩结构间距。从图2(a)、(b)可以看到,倒钩阵列由六级台阶组成,每级阶梯又由踏面(台阶水平的部分,长度用 L_t 表示)和踢面(连接两级台阶踏面的垂直部分,长度用 L_r 表示)组成。图2(c)详细展示了倒钩结构的主要参数以及制作过程。整个过程共分为6个步骤,每个步骤完

成一级台阶的制作,每级台阶的扫描方式为网格状扫描,网格的大小为 $50\ \mu\text{m}\times 50\ \mu\text{m}$ 。对于单一的倒钩结构,有两个最重要的参数:一个是倒钩结构的深度(用 D 表示),它等于6个台阶的踢面长度之和;另一个是倒钩结构的宽度(用 W 表示),它等于6个踏面长度之和。为了确保不同参数的样品仍有相似的啮合形状,倒钩结构的 W 与 D 比值被设定为5。利用这种表面处理方法可在铝合金与CFRP表面上得到相互啮合的倒钩阵列结构。CFRP的表面处理方法与铝合金完全一致,不同点仅在于激光参数的选择。表1给出了铝合金与CFRP倒钩阵列的形状参数。表2给出了制作铝合金与CFRP表面倒钩阵列所使用的激光参数。将激光处理后的铝合金与CFRP放在丙酮中超声清洗10 min以去除激光处理产生的颗粒杂质,待样品自然干燥后进行下一步黏结操作^[20]。

第三种表面处理方法为硅烷偶联剂表面改性法。

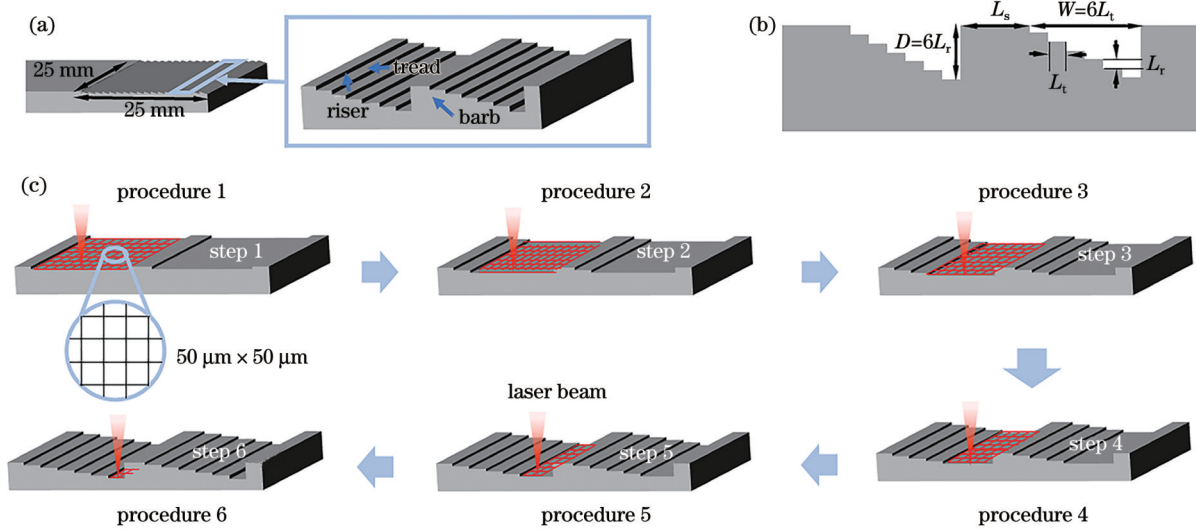


图 2 倒钩阵列参数及制作过程示意图。(a)倒钩阵列结构;(b)倒钩阵列参数示意图;(c)倒钩阵列制作过程示意图

Fig. 2 Schematics of barb array parameters and fabrication process. (a) Structure of barb array; (b) schematic of barb array parameters; (c) schematics of barb array fabrication process

表 1 倒钩结构形状参数

Table 1 Barb structure shape parameters unit: μm

Parameter	D	W	L_r	L_s	L_t
Value	60	300	10	150	50

该方法是在经过激光处理并超声清洗后的铝合金表面上均匀涂抹硅烷偶联剂,再放入干燥箱中干燥,然后进行下一步黏结操作。

2.2.2 黏结方法

用胶枪在经三种方法处理后的铝合金与 CFRP 样品表面涂抹黏结剂,通过按压的方法将铝合金与 CFRP 搭接在一起,并使倒钩结构正确啮合。通过特制夹具给铝合金与 CFRP 接头施加 0.3 MPa 的压力,

表 2 制作铝合金与 CFRP 表面倒钩阵列所使用的激光参数

Table 2 Laser parameters used to produce barb arrays on aluminum and CFRP surfaces

Scanning object	Power / W	Scanning speed / (mm/s)	Frequency / kHz	Number of scannings
Al	24	90	50	6
CFRP	24	1200	50	7

压力值的大小通过定力矩扳手调节。接头制作完成后在常温下固化 24 h,并在两端贴上垫片以平衡施加拉伸载荷时产生的力矩,制作 CFRP 铝合金胶接接头的过程示意图如图 3 所示。

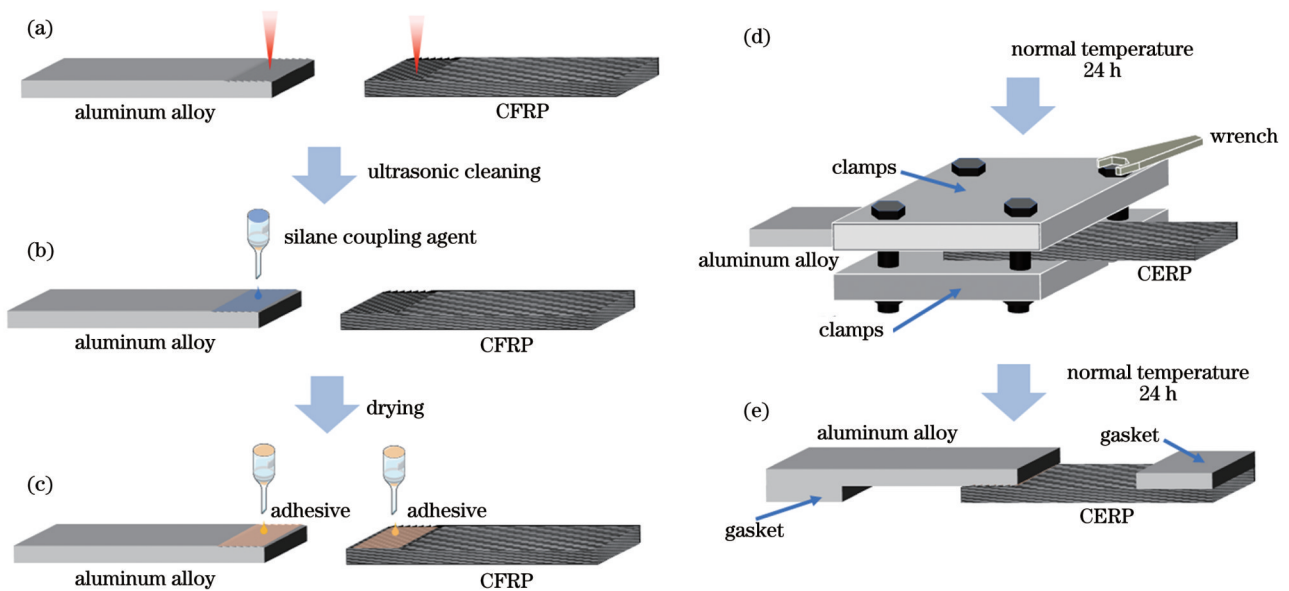


图 3 胶接过程示意图。(a)激光处理;(b)涂抹硅烷偶联剂;(c)涂抹黏结剂;(d)加压粘结;(e)添加垫片

Fig. 3 Schematics of gluing process. (a) Laser treatment; (b) application of silane coupling agent; (c) application of adhesive; (d) pressurized bonding; (e) addition of gaskets

3 结果与讨论

3.1 倒钩结构的制作与啮合效果

3.1.1 铝合金与 CFRP 表面处理后的形貌

图 4 为铝合金与 CFRP 倒钩阵列的 3D 形貌图。其中,图 4(a)、(b)是整体宏观形貌的 10 倍放大图;图 4(c)、(d)为缓坡位置的微观形貌图,拍摄倍数为 50 倍,拍摄位置分别在图 4(a)、(b)中的方框区域。从图 4(a)可以看出,铝合金倒钩结构的方向具有高度一致性,不同深度倒钩结构的缓坡与陡坡的倾斜角度基本一致。从截面数据可以看出,铝合金表面倒钩阵列深度为 $150\ \mu\text{m}$ (根据前期研究,倒钩阵列的深度为 $150\ \mu\text{m}$ 时连接强度最高,因此本实验选择倒钩阵列的

深度为 $150\ \mu\text{m}$),且宽深比为 5。图 4(c)为倒钩结构缓坡表面的微观 3D 形貌图。由于激光的扫描方式为网格状扫描,且网格的大小都为 $50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m}$,缓坡表面都为独立的尖刺状结构。这种尖刺结构可以增大黏结剂与铝合金的有效接触面积,增强机械互锁效应,有利于提升胶接接头的强度。

图 4(b)为 CFRP 表面倒钩阵列的宏观 3D 形貌图。由于碳纤维在轴向和径向上的热传导的各向异性^[21],激光阶梯扫描方法在 CFRP 表面上制备的单个倒钩结构并没有铝合金表面上的规则,但依然是明显的倒钩阵列,从截面图可以看出倒钩阵列的深度达到 $150\ \mu\text{m}$,符合实验要求。图 4(d)显示了碳纤维倒钩结构缓坡面的微观结构,其高度平缓下降,可见扫描效果比较好。

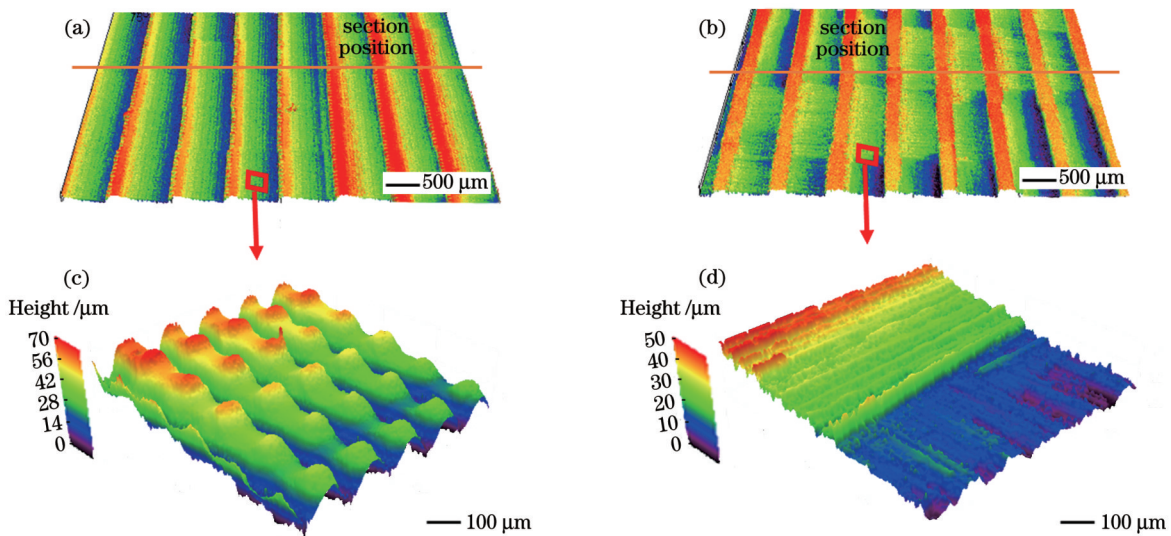


图 4 倒钩阵列结构的 3D 形貌图。(a)铝合金表面倒钩结构的宏观 3D 形貌图;(b)CFRP 表面倒钩结构的宏观 3D 形貌图;(c)铝合金倒钩结构的微观 3D 形貌图;(d)CFRP 倒钩结构的微观 3D 形貌图

Fig. 4 3D morphologies of barb array structure. (a) Macroscopic 3D morphology of barb structure on aluminum alloy surface; (b) macroscopic 3D morphology of barb structure on CFRP surface; (c) 3D microstructure of aluminum alloy barb structure; (d) 3D microstructure of CFRP barb structure

3.1.2 铝合金与 CFRP 表面倒钩啮合效果

图 5 为不同表面处理方法下的接头截面图。从图 5(a)可以清楚看到,铝合金倒钩阵列与 CFRP 倒钩阵列有比较好的啮合效果,铝合金倒钩可以嵌入到 CFRP 中,增强机械互锁效应。当施加拉伸载荷时,这

种结构可以提供反向的抵抗力,提升接头拉伸强度。同时,黏结剂在压力的作用下会流到图 3(c)所示的独立尖刺状结构的周围,使得铝合金与黏结剂的结合强度有较大的提升,避免了铝合金表面发生黏附失效。如图 5(b)所示,对于砂纸粗化处理的接头,铝合金与

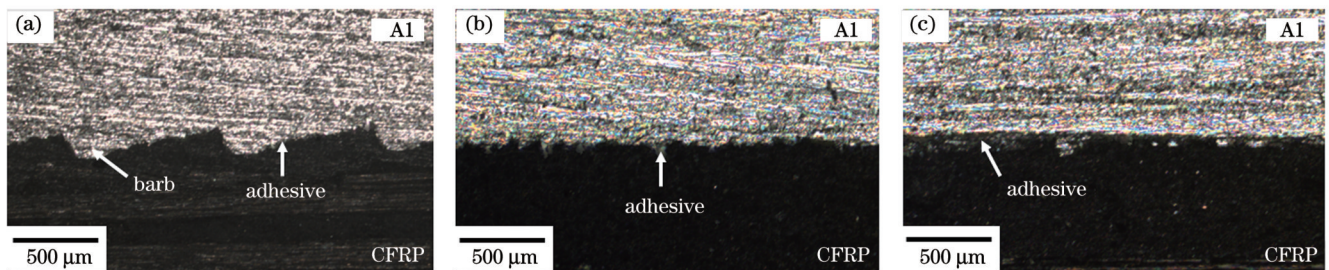


图 5 胶接接头截面图。(a)倒钩阵列接头的截面;(b)砂纸粗化处理后接头的截面;(c)未处理接头的截面

Fig. 5 Cross-sectional views of adhesive joint. (a) Cross section of barb array joint; (b) cross section of joint after sandpaper roughening; (c) cross section of untreated joint

CFRP表面都形成了不规则的微结构,少量黏结剂可以流入到这种结构中,增强了两个黏结界面之间的机械互锁效应,使接头强度提升。但是这种结构中的两个表面不能相互啮合,提供的抵抗力有限,所以接头强度提升有限。如图 5(c)所示,对于未进行表面处理的接头,铝合金表面非常光滑,黏结剂无法有效粘附在铝合金表面,因此无法形成有效接头。

3.2 断口失效分析

3.2.1 胶接界面 XPS 分析

利用 XPS 研究了硅烷偶联剂表面改性后铝合金与 CFRP 结合界面的化学键成分。图 6(a)、(b)显示了未经硅烷偶联剂表面改性处理的铝合金界面 Al2p 轨道和 O1s 轨道的 XPS 图。从图 6(a)可以看到,未处理的铝合金界面主要为 Al₂O₃ 峰(结合能为 74.7 eV)。界面上检测到的 O1s 光谱可分为三个不同的峰,即 Al₂O₃ 峰(结合能为 532.3 eV)、环氧树脂的 C=O 峰(结合能为 533.2 eV)和环氧树脂的 C—O 峰(结合能

为 531.7 eV)。Al2p 和 O1s 光谱中的所有成分峰都是从铝合金和环氧树脂之间的结合界面中检测出来的,在没有硅烷偶联剂表面改性的情况下,界面上没有形成新的化学键。图 6(c)、(d)显示了经过硅烷偶联剂表面改性处理后铝合金界面检测到的 Al2p 和 O1s 轨道的 XPS 图。与未改性的界面不同,改性后界面的 Al2p 轨道出现了一个新的峰(结合能为 74.6 eV)。图 6(d)中的 O1s 光谱分为 5 个不同的峰,即 Al₂O₃ 峰、C—O 峰、C=O 峰、O—Al 峰(结合能为 530.8 eV)及一个新的 Si—O 峰(结合能为 532.5 eV)。如图 6(a)、(c)所示,未经处理界面的 Al2p 光谱仅有一个 Al₂O₃ 峰(结合能为 532.3 eV),在硅烷改性后,铝合金表面出现另一峰。如图 6(b)、(d)所示,改性后 O1s 光谱出现了 Si—O 和 Al—O 键,这证明改性后的铝合金表面出现了新的峰 Si—O—Al,即改性后铝合金与黏结剂之间形成了化学键连接,铝合金与胶黏剂形成硅烷过渡层,增强了连接效果,有助于提升接头强度及稳定性^[22-23]。

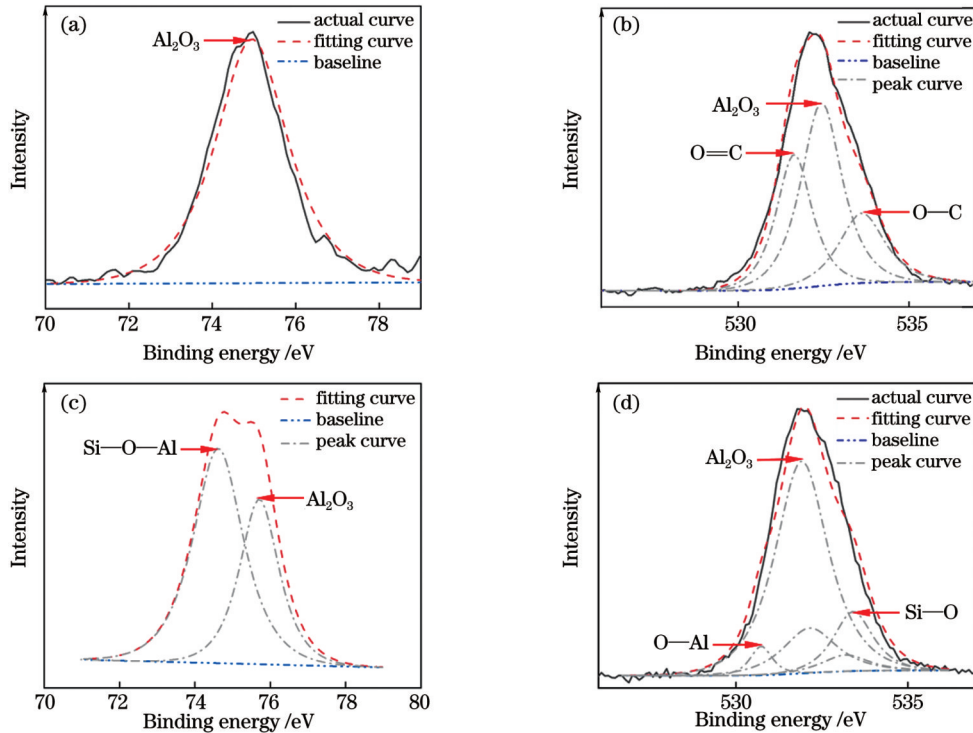


图 6 铝合金断口的 XPS 图。未经硅烷偶联剂改性的(a)Al2p 和(b)O1s 光谱;经硅烷偶联剂改性后的(c)Al2p 和(d)O1s 光谱
Fig. 6 XPS images of fracture interface of aluminum alloy. (a) Al2p and (b) O1s spectra without silane coupling agent modification; (c) Al2p and (d) O1s spectra after silane coupling agent modification

3.2.2 接头拉伸剪切强度

图 7 为不同处理方法下 CFRP 与铝合金胶接接头的强度图。强度计算方法为

$$S = \frac{F_{\max}}{A}, \quad (1)$$

式中: S 为拉伸强度; F_{max} 为最大准静态破坏载荷; A 为黏接面积。如图 7 所示,可以看出:未经任何处理的接头强度最低只有 1.5 MPa;而经过表面处理强度会

明显增加,与砂纸打磨处理相比,激光处理后的强度提升 24.6%,达到 16.7 MPa;经过硅烷改性后强度有小幅提升,达到 17.4 MPa。

3.2.3 断口失效类型分析

本实验所涉及的失效类型共分为三种。第一种是黏附失效(简称 AF)。黏附失效是指失效发生在金属与黏结剂之间或黏结剂与 CFRP 之间,且黏结剂在金属或 CFRP 表面没有残留,这种失效模式对应于最弱

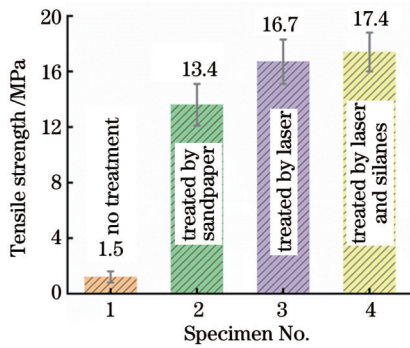


图7 接头强度图

Fig. 7 Schematic of joint strength

的结合强度,需要避免。第二种失效是内聚失效(简称CF)。内聚失效是指黏结剂内部发生的失效,即在金属与CFRP的表面都保留有一层黏结剂。许多研究表明,从黏附失效转变为内聚失效可以极大地提高黏结强度。如果CFRP部分碳纤维被拔出并残留在金属表面上,这种失效形式是碳纤维撕裂失效(简称CFT)。图8为不同表面处理方式下接头的断口及对应的拉伸强度。图8(a)为未经过任何表面处理的样品断口,可见铝合金一侧的失效类型全部为黏附失效,铝合金表面没有任何黏结剂残留,因此强度较低。图8(b)为砂纸打磨处理后接头的失效类型。经过砂纸打磨后,铝合金与CFRP表面的粗糙度显著增加,因此黏结剂与接触表面的黏结效果有很大提升,断口呈内聚失效,相

对应的黏结强度有较大的提升。但是,由于砂纸打磨的不均匀性,部分位置的黏结剂依然会从铝合金表面脱落,这些位置的失效类型是黏附失效,因此砂纸打磨处理的接头强度不是最高的。图8(c)为经过激光表面处理但是未经过硅烷偶联剂表面改性的样品断口。激光处理形成的倒钩结构会容纳更多的黏结剂,这阻止了黏附失效的形成,因此这种接头的断口基本没有黏附失效。同时,铝合金与CFRP表面相互啮合的倒钩阵列使机械互锁效应更加明显,所以接头的强度进一步提升到16.7 MPa。图8(d)为经过激光表面处理与硅烷偶联剂表面改性的样品断口。与图8(c)一样,图8(d)的失效类型依然没有黏附破坏,这就意味着强度不会很低。在硅烷偶联剂的作用下,铝合金表面被成功改性,一方面,硅烷偶联剂的作用主要是在铝合金与黏结剂之间形成化学键,增强黏附效果,减少黏附破坏的发生概率,使强度提升。但是激光处理已经使黏结剂粘结得比较牢固,黏附破坏的发生概率已经非常小,如图8(c)所示,所以强度的提升效果比较有限。另一方面,经硅烷改性后,黏结剂在铝合金表面的黏附效果得到进一步提升,小部分位置的黏结剂与铝合金的黏附异常牢靠,这些位置在拉伸时就会产生强度更高的碳纤维撕裂破坏(CFT),如图8(d)所示,接头整体强度提升,但是这种碳纤维撕裂破坏的发生概率在硅烷改性后并不是很多,因此强度的提升有限,强度进一步提升到17.4 MPa^[24-25]。

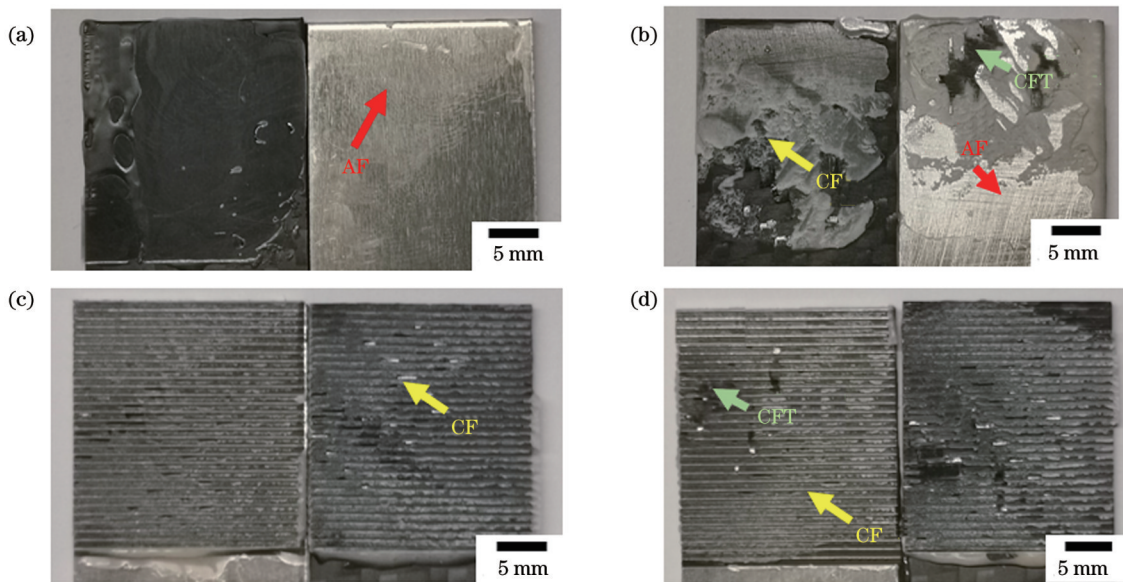


图8 不同处理方法下胶接接头的断口图。(a)未处理;(b)砂纸打磨处理;(c)只进行激光处理;(d)经过硅烷偶联剂改性和激光处理
Fig. 8 Fracture diagrams of adhesive joints under different treatment methods. (a) No treatment; (b) sandpaper treatment; (c) only laser treatment; (d) silane coupling agent modification and laser treatment

4 结 论

通过激光阶梯扫描的方法在铝合金与CFRP表面制作了相互啮合的倒钩阵列。观察了倒钩阵列的制备

效果和啮合效果,测试了不同表面处理方式对胶接接头拉伸强度的影响,分析了硅烷偶联剂改性处理后的成分变化,得到如下结论:

第一,激光阶梯扫描的方法可以在铝合金与

CFRP 表面形成规则的倒钩阵列,并且啮合完美。这种结构使铝合金与 CFRP 黏结界面之间的机械互锁效应大幅提升,形成高强度高稳定的胶接接头。

第二,对改性后的铝合金表面进行 XPS 分析,结果表明,硅烷偶联剂可以成功改性铝合金表面,在铝合金表面形成 Al—O—Si 键,这证明了硅烷偶联剂表面改性后会在黏结剂与铝合金连接界面之间形成硅烷过渡层,这是胶接接头强度进一步提升的主要原因,同时黏结界面间的硅烷过渡层也增加了接头的稳定性。

第三,接头断口图像显示,随着接头强度的增加,内聚失效开始大规模出现,同时由于硅烷偶联剂改性处理后黏结强度进一步提升,因此少部分的表层碳纤维被撕裂,断口开始出现碳纤维撕裂失效。

以上结果显示:在硅烷改性和激光织构共同作用下,接头强度明显提升,同时接头稳定性也有所提升,形成高强度胶接接头。这可以使 CFRP 与铝合金复合结构件的整体强度大幅提升,有利于 CFRP 轻量化应用。

参 考 文 献

- [1] Li H G, Xu Y W, Hua X G, et al. Bending failure mechanism and flexural properties of GLARE laminates with different stacking sequences[J]. *Composite Structures*, 2018, 187: 354-363.
- [2] 景若木, 徐洁洁, 肖荣诗, 等. 碳纤维增强复合材料与钛合金激光连接仿真[J]. *中国激光*, 2023, 50(8): 0802014.
Jing R M, Xu J J, Xiao R S, et al. Simulation study of laser joining of carbon fiber reinforced plastics and titanium alloy[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(8): 0802014.
- [3] 杜力松, 黄亚新, 张釜恺. CFRP-铝合金层板螺栓连接失效仿真及实验研究[J]. *装备制造技术*, 2021(11): 76-84, 91.
Du L S, Huang Y X, Zhang F K. Simulation and experimental study on bolt connection failure of CFRP-aluminium alloy laminates [J]. *Equipment Manufacturing Technology*, 2021(11): 76-84, 91.
- [4] Qiu X Y, Li P N, Li C P, et al. Study on chisel edge drilling behavior and step drill structure on delamination in drilling CFRP [J]. *Composite Structures*, 2018, 203: 404-413.
- [5] 邱建平, 陈金祥, 周莹, 等. CFRP/Ti 叠层构件螺旋铣孔层间孔径偏差研究[J]. *航空制造技术*, 2023, 66(9): 93-98, 111.
Qiu J P, Chen J X, Zhou Y, et al. Research on hole diameter deviation between layers in helical milling of CFRP/Ti stacks [J]. *航空制造技术*, 2023, 66(9): 93-98, 111.
- [6] Garcia R, Prabhakar P. Bond interface design for single lap joints using polymeric additive manufacturing[J]. *Composite Structures*, 2017, 176: 547-555.
- [7] Yan Y T, Liu B S, Xu T X, et al. Realizing the air brazing of ZrO₂ ceramics through Al metal[J]. *Journal of Materiomics*, 2022, 8(3): 662-668.
- [8] Persson B N J, Liu B S, Xu T X, et al. Relation between interfacial separation and load: a general theory of contact mechanics[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(12): 125502.
- [9] 胡伟, 蔡如琳, 谭利敏, 等. 几种机械表面处理对 6013 铝合金接头胶接性能的影响[J]. *粘接*, 2014, 35(1): 45-49.
Hu W, Cai R L, Tan L M, et al. Effect of mechanical surface treatments on bonding property to 6013 aluminum alloy[J]. *Adhesion*, 2014, 35(1): 45-49.
- [10] Mousa S, Kim G Y. A direct adhesion of metal-polymer-metal sandwich composites by warm roll bonding[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2017, 239: 133-139.
- [11] 邹田春, 刘志浩, 李晔, 等. 等离子体表面处理对碳纤维增强树脂基复合材料(CFRP)胶接性能及表面特性的影响[J]. *中国表面工程*, 2022, 35(1): 125-134.
Zou T C, Liu Z H, Li Y, et al. Effect of plasma surface treatment on bonding properties and surface properties of CFRP[J]. *China Surface Engineering*, 2022, 35(1): 125-134.
- [12] 苏飞, 李文毅, 李纯杰. 纤维增强复合材料激光加工研究进展[J]. *宇航材料工艺*, 2021, 51(6): 1-9.
Su F, Li W Y, Li C J. Research on laser processing of fiber reinforced plastics[J]. *Aerospace Materials & Technology*, 2021, 51(6): 1-9.
- [13] Zhang Z, Shan J G, Tan X H, et al. Improvement of the laser joining of CFRP and aluminum via laser pre-treatment[J]. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 2017, 90(9): 3465-3472.
- [14] 陈亚军, 鲁文婷, 杨雅婷. 基于响应面分析的碳纤维复合材料激光除漆工艺优化[J]. *中国激光*, 2023, 50(12): 1202005.
Chen Y J, Lu W T, Yang Y T. Optimization of laser paint removal process for carbon fiber composite substrates based on response surface analysis[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(12): 1202005.
- [15] 邹田春, 符记, 李龙辉, 等. 搭接长度对 CFRP 单搭接胶接接头拉伸性能及破坏特征的影响[J]. *材料工程*, 2021, 49(7): 158-165.
Zou T C, Fu J, Li L H, et al. Effect of overlap length on tensile properties and failure characteristics of CFRP single-lap adhesive joints[J]. *Journal of Materials Engineering*, 2021, 49(7): 158-165.
- [16] 杜婷婷, 叶云霞, 刘远方, 等. 纳秒激光调控 CFRP 复合材料表面润湿性及其对胶接性能的影响[J]. *复合材料学报*, 2021, 38(5): 1435-1445.
Du T T, Ye Y X, Liu Y F, et al. Tailoring CFRP composite surface wettability with nanosecond laser and its effect on bonding performance[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2021, 38(5): 1435-1445.
- [17] 刘一凡, 周宝升, 张涛, 等. 基于表面微织构的钛合金与 CFRP 激光连接研究[J]. *中国激光*, 2022, 49(18): 1803001.
Liu Y F, Zhou B S, Zhang T, et al. Laser joining of carbon fiber reinforced plastics to titanium alloy via laser texturing[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(18): 1803001.
- [18] Özgür Bora M, Çoban O, Akman E, et al. Comparison of novel surface treatments of Al2024 alloy for al/cfrp adhesive bonded joints[J]. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, 2020, 103: 102721.
- [19] Xie Y X, Yang B B, Lu L S, et al. Shear strength of bonded joints of carbon fiber reinforced plastic (CFRP) laminates enhanced by a two-step laser surface treatment[J]. *Composite Structures*, 2020, 232: 111559.
- [20] Zhou X K, Xue W, Liu W W, et al. Quadri-directionally anisotropic droplets sliding surfaces fabricated by selective laser texturing of aluminum alloy plates[J]. *Applied Surface Science*, 2020, 509: 145406.
- [21] Herzog D, Jaeschke P, Meier O, et al. Investigations on the thermal effect caused by laser cutting with respect to static strength of CFRP[J]. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 2008, 48(12/13): 1464-1473.
- [22] Lin W C, Li X P, Dong W P, et al. Ultrahigh bonding strength and excellent corrosion resistance of Al-TPU hybrid induced by microstructures and silane layer[J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2021, 296: 117180.
- [23] Zhu W, Xiao H, Wang J, et al. Characterization and properties of AA6061-based fiber metal laminates with different aluminum-surface pretreatments[J]. *Composite Structures*, 2019, 227: 111321.
- [24] Reitz V, Meinhard D, Ruck S, et al. A comparison of IR- and UV-laser pretreatment to increase the bonding strength of

adhesively joined aluminum/CFRP components[J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2017, 96: 18-27.
[25] Harder S, Schmutzler H, Hergoss P, et al. Effect of infrared laser

surface treatment on the morphology and adhesive properties of scarfed CFRP surfaces[J]. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2019, 121: 299-307.

Effects of Surface Silane Modification and Laser Machining Microbarb Structure on Performance of Aluminum Alloy-CFRP Adhesive Joint

Zhang Shuping¹, Cao Yu², Yang Wenfeng², Cai Yan¹, Liu Wenwen¹, Zhu Dehua^{1*}, Zhang Huan^{3**}

¹*International Science & Technology Cooperation Base for Laser Processing Robot, Wenzhou University, Wenzhou 325035, Zhejiang, China;*

²*Aviation Engineering Institute, Civil Aviation Flight University of China, Guanghan 618307, Sichuan, China;*

³*Institute of Laser and Optoelectronic Intelligent Manufacturing, Wenzhou University, Wenzhou 325105, Zhejiang, China*

Abstract

Objective The accelerated advancement of contemporary society has augmented the demand for diverse material properties, including but not limited to, fatigue properties, strength, and damage resistance, in aerospace, transportation, and navigation domains. However, conventional metallic materials, such as aluminum and titanium alloys, cannot always fulfill the high-performance frame member prerequisites specified in the aforementioned sectors. Carbon fiber-reinforced plastics (CFRP), a novel material renowned for its high-performance attributes, presents a promising potential for employment in the mentioned fields. Hence, the association of CFRP with metals is an inescapable prospect. As a connection method with a simple structure and low cost, adhesive joints have special advantages such as smooth adhesive joints, good sealing, and uniform stress distribution. The pretreatment of the bonding interface had a significant influence on joint strength. Laser processing offers significant advantages due to its environmental friendliness, high repeatability and stability, and excellent surface modification ability. Prior research has shown that laser surface treatment and chemical surface modification can enhance the strength of joints between CFRP and aluminum alloy. However, there have been limited studies on the strength changes of adhesively bonded joints between CFRP and aluminum alloy under the combined influence of both treatment methods. Therefore, this study employs a laser step scanning method to create a barb array on the surfaces of both the aluminum alloy and CFRP, and then investigates the effects of the barb array structure and silane coupling agent on the strength and failure mode of the adhesively bonded joint between the two materials.

Methods The objective of this experiment is to compare the changes in the bonding strength of the aluminum alloy and CFRP surfaces resulting from different treatment methods. Three surface treatment methods are employed: first, the surfaces of the aluminum alloy and CFRP are ground using sandpaper to increase surface roughness. Second, a barb array structure is prepared on the aluminum alloy and CFRP surfaces using a laser step-scanning method. Third, the silane coupling agent is used for surface modification. The treated CFRP and aluminum alloy surfaces are bonded together, and the tensile strength of the adhesive joint is tested using an electronic universal tester. In addition, the X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) is employed to test the surface chemical bonds after the silane treatment.

Results and Discussions The laser step scanning method is used to prepare a barb array with good morphology (Fig. 4). The orientation of the barb structure on the aluminum alloy surface is found to be highly uniform. In addition, the surface of the gradual slope features independent spiky structures, which can effectively increase the contact area between the adhesive and aluminum alloy, thus, enhancing the bonding strength. Both the aluminum alloy and CFRP barb arrays demonstrate better interlocking effects (Fig. 5). An aluminum alloy barb array can be embedded in a CFRP to enhance mechanical interlocking. Upon applying a tensile load, the structure of the joint exhibits enhanced tensile strength. The XPS is employed to investigate the chemical bonding components at the interface between the aluminum alloy and CFRP, which has been modified by the silane coupling agent. Following the silane treatment, a novel Si—O—Al chemical bond emerges on the surface of the aluminum alloy, and a silane transition layer is formed between the aluminum alloy and adhesive (Fig. 6). Compared to sandpaper, the strength after laser treatment increases by 24.6% to 16.7 MPa. After the silane modification, the strength increases slightly, reaching 17.4 MPa (Fig. 7). After the silane modification, the adhesive effect on the aluminum alloy surface is further enhanced, resulting in the appearance of carbon fiber tear failures (CFTs) and an overall improvement in the joint strength. However, the proportion of such carbon fiber tear failures is relatively low after silane modification, thus limiting the strength enhancement (Fig. 8).

Conclusions The laser step-scanning method can form a regular barb array on aluminum alloy and CFRP surfaces and mesh perfectly. The utilization of this structure can significantly enhance the joint strength, resulting in the formation of a high-strength and highly stable adhesive joint. The XPS analysis confirms that the surface of the aluminum alloy can be effectively modified by a silane coupling agent, forming an Al—O—Si bond at the surface, which verifies the formation of a silane transition layer between the adhesive and the aluminum alloy interface following the surface modification. This not only leads to an enhancement of the joint

strength, but also increases its stability. The fracture diagram shows that with an increase in joint strength, cohesion failure begins to occur on a large scale. Simultaneously, owing to the further increase in the bond strength after treatment with the silane coupling agent, a small part of the carbon fiber surface is torn, and carbon fiber tear failures begin to occur at the fracture.

The three aforementioned experimental outcomes suggest that silane modification and laser texturing can effectively enhance joint strength and form a high-strength adhesive joint, thereby strengthening the vulnerable connection between CFRP and aluminum alloy composite structural parts. This improvement significantly enhances the overall strength of composite structural parts and makes them more suitable for lightweight applications that use CFRP.

Key words laser technique; pulsed laser; laser material processing; carbon-fiber reinforced plastics; adhesive joints; shear tensile strength