(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2019-0074655
(43) 공개일자 2019년06월28일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
*C08K 3/04* (2006.01) *C08K 9/06* (2006.01)
*C09C 1/44* (2006.01) *C09C 3/12* (2006.01)
(52) CPC특허분류
*C08K 3/04* (2013.01)
*C08K 3/042* (2017.05)
(21) 출원번호 10-2017-0176179
(22) 출원일자 2017년12월20일
심사청구일자 2017년12월20일

(71) 출원인
**인하대학교 산학협력단**
인천광역시 미추홀구 인하로 100(용현동, 인하대학교)
(72) 발명자
**박수진**
서울특별시 강남구 역삼로 307, 203동 604호(역삼동, 역삼 I'PARK)
**손영래**
경기도 용인시 기흥구 사은로126번길 10, 113동 901호(보라동, 민속마을 쌍용아파트)
*(뒷면에 계속)*
(74) 대리인
**이은철, 이수찬**

전체 청구항 수 : 총 5 항

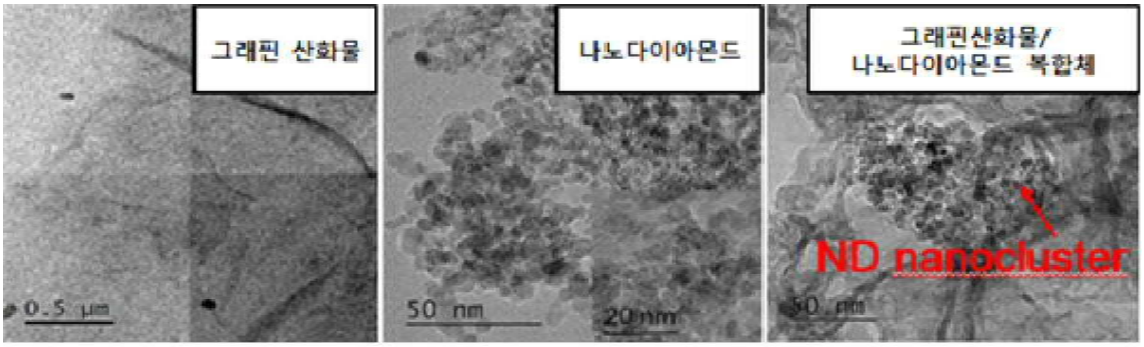
(54) 발명의 명칭 **나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물로 강화된 에폭시 복합소재 및 그 제조 방법**

## *(57) 요 약*

본 발명은 합성된 표면 개질된 그래핀 산화물과 나노다이아몬드를 에탄올에서 혼합 및 초음파 처리하여 안정된 분산액을 얻고, 이를 60°C에서 반응시킨 후 필터하여 그래핀산화물/나노다이아몬드 복합체를 제조 후 에폭시 및 경화제와 혼합하여 기계적 강도가 강화된 에폭시 복합소재를 제공하기 위한 것으로서,

(뒷면에 계속)

*대 표 도* - 도1



보다 상세하게는 (1) 강력한 산과 산화제를 이용하여 흑연을 산화시켜 그래핀 산화물을 합성하는 단계; (2) 상기 제조된 그래핀 산화물의 표면을 개질하는 단계; (3) 나노다이아몬드의 표면을 개질하는 단계; (4) 상기 제조된 표면 개질된 그래핀 산화물 및 나노다이아몬드를 혼합하여 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물 복합 필러를 제조하는 단계; (5) 상기 제조된 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물 복합 필러와 에폭시 및 경화제를 혼합하여 나노다이아몬드 나노클러스터 도입된 그래핀 산화물로 강화된 에폭시 복합소재를 제조방법을 포함한다.

상기와 같은 본 발명에 따르면, GN을 충전재로 사용하여 에폭시 수지에 첨가함으로써, 기존의 그래핀 산화물로 강화된 에폭시 복합소재에 비해 적은 양의 GN 필러로도 기계적 특성이 향상된 에폭시 복합소재를 제공하는 효과가 있다.

(52) CPC특허분류
*C08K 9/06* (2013.01)
*C08K 9/12* (2013.01)
*C08L 63/00* (2013.01)
*C09C 1/44* (2013.01)
*C09C 3/12* (2013.01)
*C08K 2201/011* (2013.01)

(72) 발명자
**허영정**
충청북도 단양군 단양읍 상진18길 5, 가동 202호
(서주단양빌라)

**장은행**
인천광역시 남구 한나루로477번길 33(용현동)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업
과제고유번호 NRF-2016H1D5A1909732
부처명 미래창조과학부
연구관리전문기관 한국연구재단
연구사업명 지역신산업선도인력양성사업
연구과제명 차폐효율 50dB 이상 자동차/항공기용 흡음 및 전자파차폐소재 개발
기 여 율 1/2
주관기관 인하대학교 산학협력단
연구기간 2016.06.01 ~ 2019.05.31
이 발명을 지원한 국가연구개발사업
과제고유번호 S2460863
부처명 중소벤처기업부
연구관리전문기관 지방중소기업청
연구사업명 중소기업기술혁신개발사업
연구과제명 3W/mk급 플립칩 패키지용 방열 접착 페이스트 개발
기 여 율 1/2
주관기관 ㈜에버텍엔터프라이즈
연구기간 2017.05.01 ~ 2019.04.30

# 명 세 서

## 청구범위

### 청구항 1

(1) (3-glycidyloxypropyl)trimethoxysilane (GLYMO)을 이용한 그래핀 산화물의 표면개질 단계;

(2) (3-aminopropyl)triethoxysilane (APTES)을 이용하여 표면개질한 나노다이아몬드로 나노클러스터를 제조하는 단계;

(3) 상기 (1) 및 (2) 단계에서 제조된 표면 개질된 그래핀 산화물 및 나노클러스터를 혼합하여 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물(GN) 제조 하는 단계;

(4) 상기 (3) 단계에서 제조된 GN에 에폭시 수지 및 경화제를 혼합하여 경화하는 단계를 포함하는 에폭시 복합재료의 제조방법.

### 청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 (1) 단계에서 그래핀 산화물(GO)에 GLYMO를 첨가하여 70 내지 90 °C의 온도에서 15 내지 30 시간 동안 반응시켜, GO-GLYMO를 제조하는 것을 포함하는 에폭시 복합재료의 제조방법.

### 청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 (2) 단계에서 나노다이아몬드(ND)에 APTES를 첨가하여 70 내지 90°C의 온도에서 3 내지 6 시간 동안 반응시켜, ND-APTES를 제조하는 것을 포함하는 에폭시 복합재료의 제조방법.

### 청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 (3) 단계에서 GO-GLYMO와 ND-APTES의 혼합비는 1 : 1 질량비 이고,

상기 GO-GLYMO와 ND-APTES를 혼합 후 극성 용매하에서 초음파 처리한 후 반응시켜 GN을 합성하는 것을 포함하는 에폭시 복합재료의 제조방법.

### 청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 (4) 단계에서 에폭시 대비 GN을 0.05 내지 0.4 중량% 사용하고,

상기 GN을 유기용매에 혼합하여 10 내지 60 분 동안 초음파로 분산시키고,

상기 경화제인 4,4’ 을 에폭시 포함하는 100 중량% 대비 26 중량%를 사용하여 경화시키는 것을 포함하는 에폭시 복합재료의 제조방법.

## 발명의 설명

## 기 술 분 야

[0001] 본 발명은 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물 (Graphene oxide decorated with Nanodiamond nanocluster : GN)로 강화된 에폭시(epoxy) 복합재료 및 그 제조방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 에폭시의 기계적 강도가 강화된 GN 강화 에폭시 복합재료 및 그 제조방법에 관한 것이다.

## 배 경 기 술

[0003] 분자 내에 epoxy group(C-O-C)을 두 개 이상 가지고 있는 에폭시는 다양한 경화제와 반응시켜 단단하며 용해되지 않는 고분자 소재로 제조할 수 있다. 에폭시의 높은 인장탄성률, 접착 특성, 내화학성, 구조적 안정성 등의 특성 때문에 에폭시 수지는 복합재의 기지재료로서 우주항공, 선박, 자동차, 코팅제, 전기전자 산업 등에서 적용되고 있다. 그러나 경화된 에폭시 수지의 높은 가교반응은 에폭시 복합소재의 깨지는 성질인 취성을 높여 충격에 매우 취약하여 기계적 특성이 떨어지는 단점을 보인다.

[0004] 한편, 최근 이러한 기계적 강도를 향상시키기 위해 다른 고분자나 탄소소재, 나노 또는 마이크로 사이즈의 입자를 복합하는 등의 방법을 도입한 연구들이 확인되고 있다.

[0005] 다양한 필러소재들 중 탄소소재는 에폭시 기지에 복합되어 열적, 기계적 특성을 월등히 향상시킬 수 있다. 다양한 탄소소재 중 그래핀 산화물(graphene oxide, GO)은 시트 형태의 그래핀이 산화된 형태로 에폭시 기지에 도입하여 기계적, 열적 특성을 향상시키는 필러로써 매우 활발히 연구되고 있다.

[0006] 나노다이아몬드는 독특한 표면 특성 및 우수한 열전도도 및 안정성, 뛰어난 기계적, 전기적 특성 그리고 마찰특성 등을 갖는다. 최근 이러한 나노다이아몬드 표면을 개질하여 다양한 고분자 기지에 도입하여 기존 고분자의 기계적 특성을 매우 향상시킨 연구 사례가 등장하고 있다.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

[0008] (특허문헌 0001) 대한민국 공개특허 10-2017-0092361 “산화 그래핀-나노 다이아몬드 결합체, 이의 제조방법, 및 이를 포함하는 나노 유체”

(특허문헌 0002) 대한민국 공개특허 10-2010-0137057 “석조문화재 보존을 위한 나노 복합 에폭시 접착제”

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

[0009] 본 발명의 목적은, 기계적 강도가 강화된 에폭시 소재를 제공하는데 있어서 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물 필러 제조와 이를 사용함으로써, 기계적 강도가 강화된 ‘나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물(GO-ND: GN)’ 강화 에폭시 복합재료 및 그 제조방법을 제공하는데 있다.

### 과제의 해결 수단

[0011] 상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은 기계적 강도가 향상된 에폭시 복합재료 및 그 제조 방법을 제공한다.

[0012] 본 발명의 다른 유형에 따르는 GN 강화 에폭시 복합재료의 제조방법은 (1) (3-glycidyloxypropyl)trimethoxysilane (GLYMO)을 이용한 그래핀 산화물의 표면개질 단계, (2) (3-aminopropyl)triethoxysilane (APTES)을 이용하여 표면개질한 나노다이아몬드로 나노클러스터를 제조하는 단계, (3) 상기 (1) 및 (2) 단계에서 제조하여 표면 개질된 그래핀 산화물 및 나노클러스터를 혼합하여 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물(GN) 제조 하는 단계, (4) 상기 (3) 단계에서 제조된 GN에 에폭시 수지

및 경화제를 혼합하여 경화하는 단계를 포함한다.

[0013] 더욱 상세하게는, 상기 (4) 단계에서 에폭시는 100 g, 경화제(4,4' 는 전체 중량 대비 26 중량%인 34 내지 36 g, GN은 0.05 내지 0.4 중량%인 것을 포함할 수 있다.

## 발명의 효과

[0015] 상기와 같은 본 발명에 따르면, GN을 충전재로 사용하여 에폭시 수지에 첨가함으로써, GN의 GO는 많은 산소관능기 및 나노다이아몬드가 열경화성 수지로 가공이 용이한 에폭시 수지와의 강한 계면 결합력을 이끌어내어, 기계적 강도가 향상된 에폭시 복합소재가 제조되는 효과가 있다.

## 도면의 간단한 설명

[0017] 1 은 본 발명에서 제조한 그래핀 산화물, 나노다이아몬드, GN의 TEM 사진이다.

도 2 는 본 발명에서 제조한 GN 강화 에폭시 복합소재의 실시예5의 굴곡강도 측정 후 파단면의 SEM 사진이다.

도 3 은 본 발명의 다른 실시예에 따른 GN 강화 에폭시 복합소재와 비교예의 굴곡강도 및 향상정도의 비교 그래프이다.

## 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0018] 이하, 본 발명을 상세히 설명한다.

[0019] 본 발명의 다른 유형에 따르는 GN 강화 에폭시 복합재료의 제조방법은 (1) (3-glycidyloxypropyl)trimethoxysilane (GLYMO)을 이용한 그래핀 산화물의 표면개질 단계, (2) (3-aminopropyl)triethoxysilane (APTES)을 이용하여 표면개질한 나노다이아몬드로 나노클러스터를 제조하는 단계, (3) 상기 (1) 및 (2) 단계에서 제조된 표면 개질된 그래핀 산화물 및 나노클러스터를 혼합하여 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물(GN) 제조 하는 단계, (4) 상기 (3) 단계에서 제조된 GN에 에폭시 수지 및 경화제를 혼합하여 경화하는 단계를 포함한다.

[0020] 더욱 상세하게는, 상기 (4) 단계에서 에폭시는 100 g, 경화제(4,4' 는 전체 중량 대비 26 중량%인 34 내지 36 g, GN은 0.05 내지 0.4 중량%인 것을 포함할 수 있다.

[0022] 본 발명의 일 측면에 따른 GN 강화 에폭시 복합소재는 에폭시 기지에 GN이 첨가되어 얻어진다.

[0023] 본 발명의 제조과정을 상세히 살펴보면, 상기 (1) 단계에 사용된 상기 그래핀 산화물을 향상된 허머스(Hummers) 방법을 통해 합성하였다. 황산($H_2SO_4$) 120 mL와 인산($H_3PO_4$) 13.3 mL를 혼합한 산성용액에 1 g의 흑연을 넣은 뒤, 용액의 온도를 0°C에 가깝게 유지시키면서 6 g의 과망간산칼륨($KMnO_4$)을 천천히 첨가한다. 과망간산칼륨이 완전히 용해시킨 뒤, 용액의 온도를 40 내지 55°C의 온도범위에서 가열하여 유지시키고 12 내지 24시간 동안 반응시키는 것이 바람직하다. 반응이 끝난 용액을 냉각된 물이 담긴 초자에 천천히 부어준 뒤, 과산화수소($H_2O_2$)를 상기 반응이 끝난 용액의 거품이 생성되지 않을 때까지 천천히 첨가해준다. 그 다음, 아세톤, 증류수를 이용해 세척한 후 동결 건조하여 그래핀 산화물을 얻는다.

[0024] 상기 합성된 그래핀 산화물을 사용하여 상기 (1) 단계의 표면처리를 진행하였다. 향상된 허머스(Hummers) 방법을 통해 합성된 상기 그래핀 산화물의 표면에는 매우 많은 하이드록시(-OH)) 작용기와 표면처리제로 사용되는 (3-glycidyloxypropyl)trimethoxysilane (하기에 GLYMO로 기재)가 반응하여 표면에 에폭시 그룹이 말단에 있는 GLYMO가 화학적 결합을 통해 표면이 개질된다. 그래핀 산화물 0.8 g과 GLYMO을 에탄올에 넣고 pH 11 및 70 내지 90 °C의 온도범위에서 15 내지 30시간 동안 반응시키는 것이 바람직하다. 그 다음, 잔류하는 GLYMO를 제거하기 위해 에탄올과 증류수를 이용하여 세척하고 건조하여 GLYMO-그래핀 산화물을 제조하였다.

[0025] 상기 (2) 단계의 나노클러스터는 나노다이아몬드에 표면처리를 하여 제조하였다. (3-

aminopropyl)triethoxysilane (하기에 APTES로 기재)과 0.8 g의 나노다이아몬드를 에탄올에 넣고 pH 11 및 70 내지 90°C의 온도범위에서 3 내지 6 시간 동안 반응시키는 것이 바람직하다. 잔류하는 APTES를 제거하기 위해 에탄올과 증류수를 이용하여 세척하고 건조하여 APTES-나노다이아몬드를 제조하였다.

[0026] 상기 나노다이아몬드는 크기가 1 내지 1000 nm 의 크기를 갖는 나노다이아몬드인 것을 특징으로 한다.

[0027] 상기 (3) 단계의 나노다이아몬드 나노클러스터가 도입된 그래핀 산화물을 제조하는 단계는 (2) 단계의 GLYMO-그래핀 산화물 0.4 g과 (3) 단계의 APTES-나노다이아몬드를 0.4 g을 200 mL의 에탄올에 넣고 초음파 처리 후, 50 내지 70 °C 온도 범위에서 8 내지 16시간 동안 반응시키는 것이 바람직하다. 반응이 끝난 용액을 필터한 후, 증류수를 이용해 수차례 세척하고 50 내지 80 °C의 오븐에서 건조하여 GN을 제조하였다.

[0028] 상기 (4) 단계의 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하는 단계는 상기 (3) 단계에서 제조된 GN을 필러로 사용하여 에폭시 복합재료를 제조하는 단계로써, 극성용매 하에서 GN을 에폭시 수지 100 g 대비 0.05 내지 0.4 중량%로 분산시킨 후, 60 내지 80°C에서 가열된 에폭시 수지에 첨가하여 혼합하고, 필러가 고르게 분산 될 수 있도록 혼합된 용액을 초음파 분산기를 사용하여 10 내지 60분 동안 분산시킨다. 초음파 분산기로 분산시킬 때, 10 분 미만일 경우에는 분산의 효과가 좋지 못하며, 60 분을 초과할 경우에는 필러를 손상시킬 수 있고 분산의 효과가 크게 향상되지 않는다. 극성용매는 에탄올 또는 아세톤일 수 있으며, 바람직하게는 GN의 함량은 0.15 내지 0.3 중량% 일 수 있고, 더 바람직하게는 0.2 중량% 일 수 있다. 또한, 초음파 분산시간은 30 분 동안 처리하여 주는 것이 바람직하다.

[0029] 초음파 처리 후, 용액의 극성용매를 제거하여 주기위해 80 °C의 진공오븐에서 15 내지 30시간 동안 실시하고, 바람직하게는 21 내지 24시간 일 수 있다. 혼합과정에서 발생한 기포는 최종적으로 제조된 에폭시 복합재료 내에 기공을 형성하여 복합재료의 강도를 저하시킬 수 있다.

[0030] 기포가 제거된 GN이 첨가된 에폭시 수지에 경화제인 4,4’ 을 에폭시 대비 26 %정도인 34 내지 36 g 정도 첨가한 후 15 분 동안 교반하고 60 °C 진공오븐에서 감압 하에 10 내지 30분 동안 기포를 제거해준다. 그 다음, 경화오븐에서 110 내지 170°C로 4시간 동안 경화시킨다. 110 °C 미만일 경우에는 완전히 경화되지 않으며, 170 °C 이상일 경우에는 물성저하를 초래한다.

[0031] 이하, 실시예를 통하여 본 발명을 더욱 상세히 설명하고자 한다. 이들 실시예는 오로지 본 발명을 예시하기 위한 것으로서, 본 발명의 범위가 이들 실시예에 의해 제한되는 것으로 해석되지는 않는 것은 당업계에서 통상의 지식을 가진 자에게 있어서 자명할 것이다.

[0033] **실시예 1.**

[0034] 향상된 허머스(Hummers) 방법을 통해 흑연을 산화시켜 그래핀 산화물을 제조한 후, 그래핀 산화물 0.8 g에 GLYMO 0.8 g을 에탄올 250 mL에 넣고, pH 11 및 70 내지 90 °C의 온도범위에서 15 내지 30 시간 동안 반응시킨 후, 잔류하는 GLYMO를 제거하기 위해 에탄올과 증류수를 이용하여 세척하고 건조하여 표면이 GLYMO로 개질된 GLYMO-그래핀 산화물을 제조하였다.

[0035] 그리고 나노다이아몬드 0.8 g에 APTES 0.8 g을 에탄올 350 ml에 넣고, pH 11 및 70 내지 90°C의 온도범위에서 3 내지 6 시간 동안 반응시킨 후, 잔류하는 GLYMO를 제거하기 위해 에탄올과 증류수를 이용하여 세척하고 건조하여 표면이 APTES로 개질된 APTES-나노다이아몬드를 제조하였다.

[0036] 그 다음, GLYMO로 개질된 그래핀 산화물과 APTES로 개질된 나노다이아몬드를 각각 0.4 g씩 200 mL의 에탄올에 넣고 혼합하여 초음파 처리 후 50 내지 70 °C 온도 범위에서 8 내지 16시간 동안 반응시킨 후, 50 내지 80 °C의 오븐에서 건조시켜 GN을 제조하였다. 그 다음, 에폭시 100 중량 대비 0.05 중량% 만큼의 GN을 에탄올 200 ml에 넣고 초음파 분산기를 이용하여 30 분 동안 분산시켜 준비한 후, 에폭시 100 g과 60 g의 에탄올을 혼합한 용액에 첨가하여 혼합한다. 이 후, 80 °C에서 1시간 동안 교반시켜 준다. 교반이 끝난 용액 내의 기포를 제거하기 위해 80 °C의 진공오븐에서 감압 하에 15 내지 30시간 동안 실시하고 한다. 그 다음, 경화제 4,4’ 을 34 내지

36 g 정도 첨가한 후 15 분 동안 교반하고 60 °C 진공오븐에서 감압 하에 30 분 동안 기포를 제거해준다. 그 다음, 경화오븐에서 170 °C로 4 시간 동안 경화시켜 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0038] **실시예 2.**

[0039] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.1 중량%로 하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0041] **실시예 3.**

[0042] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.15 중량%로 하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0044] **실시예 4.**

[0045] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.2 중량%, 에폭시, 경화제, GN 혼합 후 기포제거시간을 10 분 동안 실시하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0047] **실시예 5.**

[0048] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.2 중량%로 하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0050] **실시예 6.**

[0051] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.2 중량%, GN의 분산시간을 60 분 동안 실시하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0053] **실시예 7.**

[0054] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.3 중량%로 하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0056] **실시예 8.**

[0057] 상기 실시예 1과 동일하게 과정을 실시하되, GN의 함량을 0.4 중량%로 하여 GN 강화 에폭시 복합재료를 제조하였다.

[0059] **비교예 1.**

[0060] 100 g의 에폭시 수지를 80 °C에서 10 분 동안 교반하여 점도를 낮춘 후 34 내지 36 g의 경화제를 첨가하여 15 분 동안 교반한다. 이 후 진공오븐에서 감압 하에 60 °C에서 30 분 동안 기포를 제거한 다음, 경화오븐을 이용하여 170 °C로 4 시간 동안 경화시켜 경화된 에폭시 수지를 제조하였다.

[0062] **비교예 2.**

[0063] 향상된 허머스 방법을 통해 제조된 그래핀 산화물을 에폭시 100 중량 대비 0.2 중량% 만큼의 양을 에탄올에 넣

고 30 분 동안 초음파 처리하여 분산시키고, 100 g의 에폭시 수지를 80 °C에서 10분 동안 교반하여 점도를 낮춘 후 상기 초음파 처리된 그래핀 산화물 분산액을 혼합한 뒤, 80 °C에서 1 시간 동안 교반시킨다. 그 다음, 상기 혼합물을 진공오븐에서 감압하에 80 °C에서 24 시간 동안 용매를 증발시켜준다. 그 다음, 경화제를 첨가하여 15 분 동안 교반한다. 이 후 진공오븐에서 감압하에 60 °C에서 30 분 동안 기포를 제거한 다음, 경화오븐을 이용하여 170 °C로 4 시간 동안 경화시켜 경화된 에폭시/그래핀 산화물 복합소재를 제조하였다.

[0065] 실시예 1 내지 실시예 8, 비교예 1 내지 비교예 2에 따른 에폭시 /그래핀 산화물 복합소재의 제조조건을 하기 표 1에 도시하였다.

표 1

[0066]

| 샘플명 | 필러 종류 | 필러의 함량 (중량%) | 분산시간 (min) | 교반시간 (min) | 기포제거시간 (min) | 경화온도 (°C) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 실시예 1 | GN | 0.05 | 30 | 15 | 30 | 170 |
| 실시예 2 | GN | 0.1 | 30 | 15 | 30 | 170 |
| 실시예 3 | GN | 0.15 | 30 | 15 | 30 | 170 |
| 실시예 4 | GN | 0.2 | 30 | 15 | 10 | 170 |
| 실시예 5 | GN | 0.2 | 30 | 15 | 30 | 170 |
| 실시예 6 | GN | 0.2 | 60 | 15 | 30 | 170 |
| 실시예 7 | GN | 0.3 | 30 | 15 | 30 | 170 |
| 실시예 8 | GN | 0.4 | 30 | 15 | 30 | 170 |
| 비교예 1 | - | - | - | 15 | 30 | 170 |
| 비교예 2 | 그래핀 산화물 | 0.2 | 30 | 15 | 30 | 170 |

[0074] **측정예 1. 본 발명에서 제조한 GN의 TEM 관찰**

[0075] 본 발명에서 제조된 GN의 미세구조를 그래핀 산화물 및 나노다이아몬드의 미세구조와 비교 관찰하기 위해 transmission electron microscopy (TEM, JEM-2100F, JEOL, Japan)를 사용하여 관찰하였고, 결과는 도1에 도시하였다.

[0077] **측정예 2. 본 발명에서 제조한 GN 강화 에폭시 복합소재의 굴곡강도 시험 후 파단면 관찰**

[0078] GN이 강화 필러로서 에폭시 복합소재의 구조를 변화시켰는지 관찰하기 위해 scanning electron microscopy (SEM, SU 8010, Hitachi, Ltd., Japan)을 이용하여 관찰하였고, 결과는 도2에 도시하였다.

[0080] **측정예 3. 굴곡 실험**

[0081] 굴곡강도 시험은 GN 강화 에폭시 복합소재를 ASTME-399 규격에 따라 시편을 제조한 후 3 포인트 굴곡강도 시험 방법으로 만능재료시험기를 이용하여 실시하였고, 실시예 1 내지 실시예 8, 비교예 1 내지 비교예 2에 따른 에

폭시 /그래핀 산화물 복합소재의 기계적 강도(굴곡강도 및 향상정도, $K_{Ic}$값, $G_{Ic}$값)를 하기 표 2 에 도시하였으며, 실시예 1 내지 실시예 8, 비교예 1 내지 비교예 2에 따른 굴곡강도 및 향상정도의 비교결과는 도 3에 도시하였다.

*표 2*

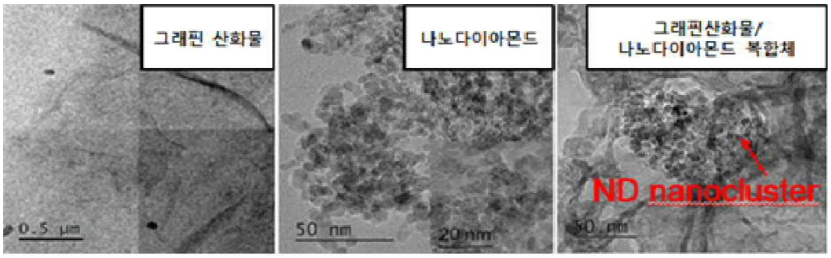
[0086]

| | 굴곡 강도 (MPa) | 굴곡강도 향상정도(%) | $K_{Ic}$ | $G_{Ic}$ |
|---|---|---|---|---|
| 실시예 1 | 141.3 ±2.3 | 15.1 | 5.7 ±0.1 | 47.1 ±2.1 |
| 실시예 2 | 148.2 ±1.5 | 20.7 | 5.9 ±0.1 | 49.2 ±1.5 |
| 실시예 3 | 150.7 ±2.1 | 22.7 | 6 ±0.2 | 52.8 ±2.6 |
| 실시예 4 | 150.3 ±8.3 | 22.4 | 5.9 ±0.2 | 53.2 ±4.2 |
| 실시예 5 | 153.8 ±5.4 | 25.2 | 6.1 ±0.1 | 56.4 ±3.1 |
| 실시예 6 | 153.6 ±4.8 | 25.1 | 6.3 ±0.2 | 55.9 ±2.8 |
| 실시예 7 | 152.8 ±4.6 | 24.4 | 7.0 ±0.1 | 68.7 ±3.8 |
| 실시예 8 | 148 ±8.4 | 20.5 | 7.6 ±0.3 | 76.7 ±5.1 |
| 비교예 1 | 122.8 ±7.1 | - | 4.5 ±0.2 | 25.2 ±1.8 |
| 비교예 2 | 138 ±1.8 | 12.4 | 5.8 ±0.5 | 44.3 ±3.2 |

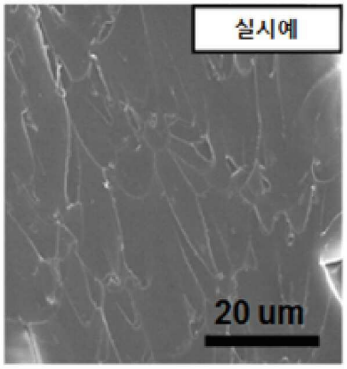
[0089] 이상, 본 발명내용의 특정한 부분을 상세히 기술하였는바, 당업계의 통상의 지식을 가진 자에게 있어서, 이러한 구체적인 기술은 단지 바람직한 실시양태일 뿐이며, 이에 의해 본 발명의 범위가 제한되는 것이 아닌 점은 명백할 것이다. 따라서 본 발명의 실질적인 범위는 첨부된 청구항들과 그것들의 등가물에 의해 정의된다고 할 것이다.

## 도면

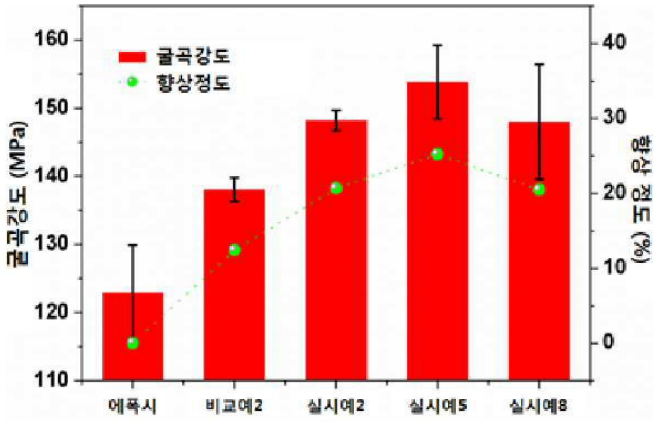
### 도면1



도면2


실시예
20 um

도면3


굴곡강도
향상정도
굴곡강도 (MPa)
향상정도 (%)
160
150
140
130
120
110
40
30
20
10
0
에폭시
비교예2
실시예2
실시예5
실시예8