



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2008년01월21일
(11) 등록번호 10-0796214
(24) 등록일자 2008년01월14일

(51) Int. Cl.

C08L 63/00 (2006.01) *C08K 5/16* (2006.01)

(21) 출원번호 10-2006-0124440

(22) 출원일자 2006년12월08일

심사청구일자 2006년12월08일

(56) 선행기술조사문헌

Eur. Polym. J., 2005

J. Korean Ind. Eng. Chem., 2004

J. Polym. Sci., 2006

KR100688912 B1

전체 청구항 수 : 총 8 항

(73) 특허권자

인하대학교 산학협력단

인천 남구 용현동 253 인하대학교

(72) 발명자

박수진

대전 유성구 도룡동 431-6 현대아파트 103-403

(74) 대리인

이은철

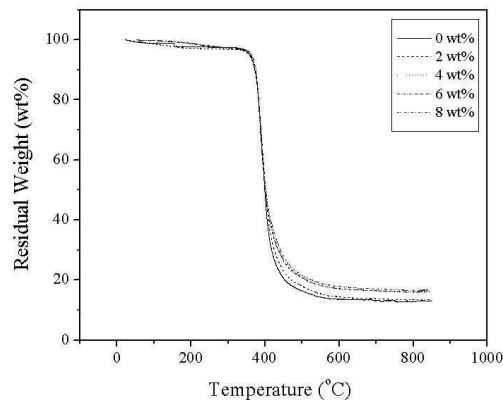
심사관 : 최차희

(54) 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법

(57) 요약

본 발명은 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 고수지형 폴리이미드 0.5 내지 20 중량%로 구성되어 열적 및 기계적 특성이 우수한 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법에 관한 것이다. 본 발명의 혼합조성물은 종래의 에폭시 수지보다 열 안정성 및 기계적 물성이 월등히 향상되어 경제적 측면뿐만 아니라 에폭시 수지를 대체하는 고기능성 구조용 매트릭스 수지 등으로 널리 사용될 수 있어 유용하다.

대표도 - 도1

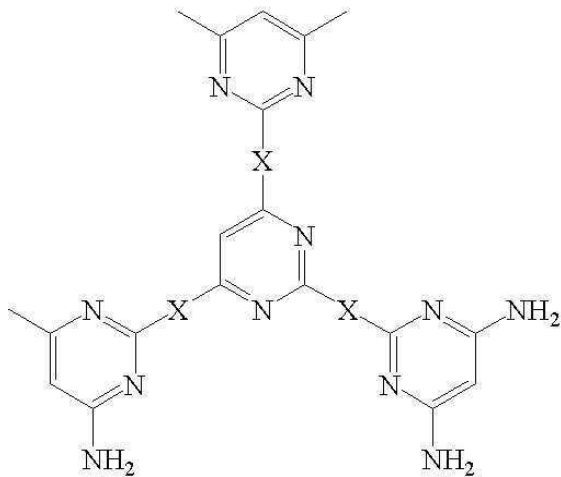


특허청구의 범위

청구항 1

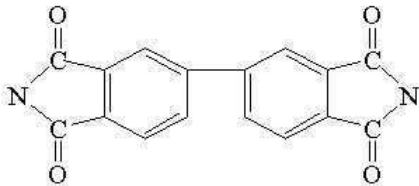
에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 하기 화학식 1의 구조를 가지는 고수지형 폴리이미드 (HBPI) 0.5 내지 20 중량%로 이루어진 에폭시 수지 혼합조성물.

[화학식 1]

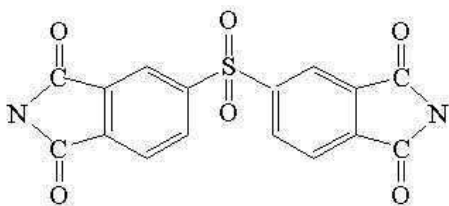


여기서, X 는 하기 화학식 2 내지 화학식 7 중에서 선택되는 구조를 가지는 화합물을 나타낸다.

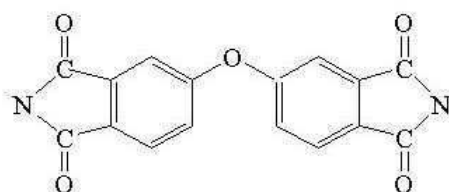
[화학식 2]



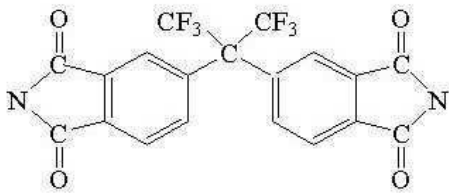
[화학식 3]



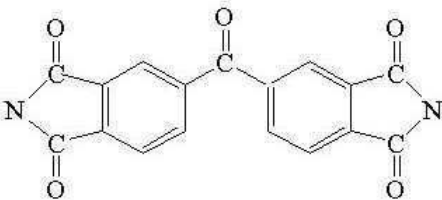
[화학식 4]



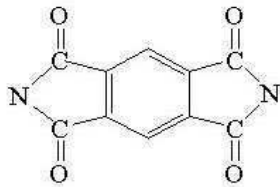
[화학식 5]



[화학식 6]



[화학식 7]



청구항 2

삭제

청구항 3

제 1항에 있어서,

순수한 에폭시 수지와 비교하여 열 안정성이 0.1 내지 1% 범위로 증가한 것을 특징으로 하는 에폭시 수지 혼합 조성물.

청구항 4

제 1항에 있어서,

순수한 에폭시 수지와 비교하여 유리 전이온도가 1 내지 3% 범위로 증가한 것을 특징으로 하는 에폭시 수지 혼합 조성물.

청구항 5

제 1항에 있어서,

순수한 에폭시 수지와 비교하여 임계응력 세기인자가 125 내지 150% 범위로 증가한 것을 특징으로 하는 에폭시 수지 혼합 조성물의 제조방법.

청구항 6

제 1항에 있어서,

순수한 에폭시 수지와 비교하여 충격 강도가 65 내지 83% 범위로 증가한 것을 특징으로 하는 에폭시 수지 혼합 조성물.

청구항 7

상기 화학식 1의 구조를 가지는 고수지형 폴리이미드 (HBPI)를 합성하여 0.5 내지 20 중량% 범위로 첨가하고, 에폭시 수지를 80 내지 95.5 중량% 범위로 혼합하여 경화시키는 과정으로 이루어진 제 1항의 에폭시 수지 혼합 조성물의 제조방법.

청구항 8

삭제

청구항 9

제 7항에 있어서,

상기 고수지형 폴리이미드 (HBPI)는 (1) 2,4,6-트리아미노피리미딘 (TAP) 및 4,4'-바이프탈릭 안하이드라이드 (BPAD) 를 가열하고 교반하여 반응시키고; (2) 다시 자일렌을 첨가하여 반응시키고; (3) 알코올을 가하여 침전시키고; 및 (4) 침전물을 여과하여 건조시키는; 과정으로 얻어진 것을 특징으로 하는 제조방법.

청구항 10

제 7항에 있어서,

상기 고수지형 폴리이미드 (HBPI)는 (1) 3,3', 4,4'-디페닐술폰 테트라카복실릭 디안하이드라이드 (DSDA)를 가열하고 교반하여 반응시키고; (2) 다시 자일렌을 첨가하여 반응시키고; (3) 알코올을 가하여 침전시키고; 및 (4) 침전물을 여과하여 건조시키는; 과정으로 얻어진 것을 특징으로 하는 제조방법.

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

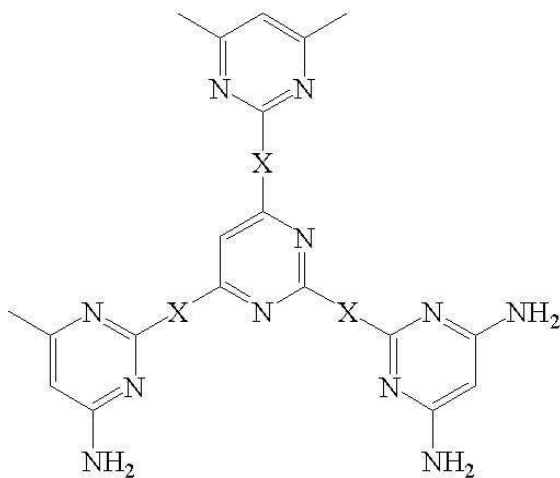
- <5> 본 발명은 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 고수지형 폴리이미드 0.5 내지 20 중량%로 구성되어 열적 및 기계적 특성이 우수한 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법에 관한 것이다.
- <6> 종래의 에폭시 하이브리드 조성물은 기계적 물성 또는 열적 물성을 향상시키기 위하여 에폭시 수지와 선상 열경화성 수지 또는 열가소성 수지를 혼합하여 제조되어 왔다.
- <7> 최근에는, ABx 형태의 단량체로부터 고수지형 고분자를 합성하려는 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 고수지형 고분자는 선형 고분자에 비하여 고분자 용액의 점도가 낮고 유기용매에 대한 용해도가 높으며 대량 생산이 용이한 장점을 가진다. 이로 인해 고수지형 고분자는 화학, 생물 및 생의학 등의 분야에서 많은 주목을 받고 있다.
- <8> 또한, 고수지형 고분자를 이용하여 에폭시 수지의 취성을 향상시키는 연구들도 활발히 진행되고 있다. 실제로 에폭시 수지의 혼합조성물에 사용된 고수지형 고분자로써는 에폭시화 고수지형 폴리에스터 (epoxidized hyperbranched polyester), 하이드록시 작용기화 고수지형 폴리올 (hydroxy-functionalized hyperbranched polyols) 및 고수지형 폴리에스터 (hyperbranched polyester) 등을 들 수 있다 (R. J. Varley, *Polym. Int.*, 53: 69, 2004; D. Ratna, *Polymer*, 42: 8833, 2001; G. Xu, *Polym. Adv. Technol.*, 15: 639, 2004). 이와 같은 혼합 조성물은 통상적인 선상 고분자와 비교하여 조성물의 강도 (toughness)를 현저하게 증가시키는 반면에 혼합 조성물의 열적 물성 및 유리 전이온도는 저하시키는 특성을 가지는 것으로 보고되어 있다.
- <9> 상기 문제점을 해결하기 위하여, 본 발명자들은 종래의 선상 고분자의 열적 물성과 유리 전이온도는 저하시키지 않고 동시에 기존의 혼합조성물 보다 기계적 물성은 우수한 고기능성 수지의 혼합조성물을 제조하고자 연구를 계속하였다. 그 결과, 고수지형 폴리이미드를 첨가하여 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 고수지형 폴리이미드 0.5 내지 20 중량%로 구성되는 에폭시 수지 혼합조성물이 열 안정성 및 기계적 물성 등을 탁월하게 개선하여 고기능성 구조용 매트릭스 수지 등으로 개발될 수 있을 뿐만 아니라 경제적 측면에서도 유용한 것을 확인함으로써 본 발명을 성공적으로 완성하였다.

발명이 이루고자 하는 기술적 과제

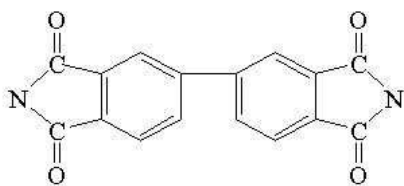
- <10> 본 발명은 고수지형 폴리이미드를 열 안정성 및 기계적 물성이 개선된 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.
- <11> 상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 고수지형 폴리이미드 (HBPI) 0.5 내지 20 중량%로 이루어진 에폭시 수지 혼합조성물을 제공한다.
- <12> 또한, 본 발명은 고수지형 폴리이미드 (HBPI)를 합성하여 0.5 내지 20 중량% 범위로 첨가하고, 에폭시 수지를 80 내지 95.5 중량% 범위로 혼합하여 경화시키는 과정으로 이루어진 에폭시 수지 혼합조성물의 제조방법의 제공한다.

발명의 구성 및 작용

- <13> 이하, 본 발명을 상세히 설명하면 다음과 같다.
- <14> 본 발명은 고수지형 폴리이미드 (hyperbranched polyimide; HBPI)를 첨가하여 열 안정성 및 기계적 물성이 개선된 에폭시 수지 혼합조성물을 제공한다.
- <15> 구체적으로, 본 발명은 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 고수지형 폴리이미드 (HBPI) 0.5 내지 20 중량%로 이루어진 에폭시 수지 혼합조성물을 제공한다.
- <16> 상기 고수지형 폴리이미드로는 하기 화학식 1의 구조를 가지는 화합물을 사용하는 것이 바람직하고, 바이프탈릭 안하이드라이드-트리아미노피리미딘 (BPAD-TAP) 고수지형 폴리이미드 및 디페닐술폰 테트라카복실릭 디안하이드라이드-트리아미노피리미딘 (DSDA-TAP) 고수지형 폴리이미드 등을 사용하는 것은 더욱 바람직하다.
- <17> [화학식 1]

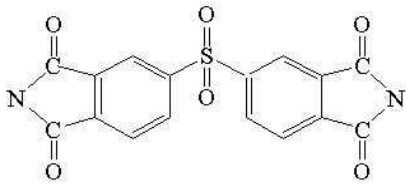


- <18>
- <19> 여기서, X 는 하기 화학식 2 내지 화학식 7 중에서 선택되는 구조를 가지는 화합물을 나타낸다.
- <20> [화학식 2]



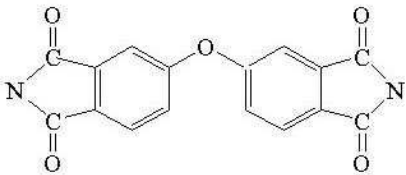
<21>

<22> [화학식 3]



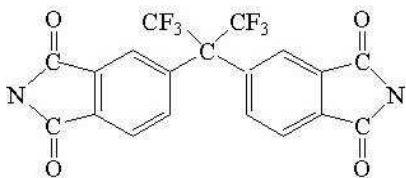
<23>

<24> [화학식 4]



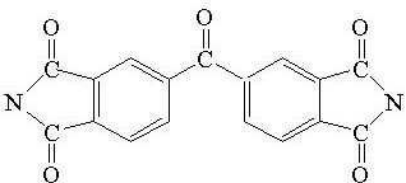
<25>

<26> [화학식 5]



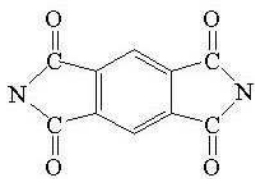
<27>

<28> [화학식 6]



<29>

<30> [화학식 7]



<31>

<32> 본 발명의 에폭시 수지 혼합조성물은 순수한 에폭시 수지와 비교하여 열 안정성은 0.1 내지 1% 범위로 증가하고, 유리 전이온도는 1 내지 3% 범위로 증가하며, 임계응력 세기인자가 125 내지 150% 범위로 증가하고, 충격 강도는 65 내지 83% 범위로 증가하는 것을 특징으로 한다.

<33> 또한, 본 발명은 고수지형 폴리이미드 (HBPI)를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물을 얻는 제조방법을 제공한다.

<34> 구체적으로, 고수지형 폴리이미드 (HBPI)를 합성하여 0.5 내지 20 중량% 범위로 첨가하고, 에폭시 수지를 80 내지 95.5 중량% 범위로 혼합하여 경화시키는 과정으로 이루어진 에폭시 수지 혼합조성물의 제조방법을 제공한다.

<35> 본 발명의 혼합조성물의 제조방법에 있어서, 상기 고수지형 폴리이미드로는 상기 화학식 1의 구조를 가지는 화합물을 사용하는 것이 바람직하고, 바이프탈릭 안하이드라이드-트리아미노피리미딘 (BPAD-TAP) 고수지형 폴리이미드 및 디페닐술폰 테트라카복실릭 디안하이드라이드-트리아미노피리미딘 (DSDA-TAP) 고수지형 폴리이미드 등을 사용하는 것은 더욱 바람직하다.

- <36> 또한, 상기 경화 과정에서 경화제로는 디아미노 디페닐 메탄 (diamino diphenyl methane; DDM)를 사용하는 것이 바람직하고, 경화 조건은 110 ℃에서 1시간, 150℃에서 2시간 및 180℃에서 1시간 내외 범위로 실시하는 것이 바람직하다.
- <37> 또한, 상기 에폭시 수지로는 모든 종류의 에폭시 수지가 사용될 수 있지만 상용화된 이관능성 에폭시 수지를 사용하는 것도 바람직하며, 밀도 1.17 g/cm³, 점도 14,000 cps 및 당량 EEW 185 내지 190 g/eq 내외 범위에 해당하는 에폭시 수지를 사용하는 것이 더욱 바람직하다.
- <38> 또한, 본 발명은 상기 혼합조성물에 첨가하는 고수지형 폴리이미드를 얻는 제조방법을 제공한다.
- <39> 구체적으로, 본 발명은 (1) 2,4,6-트리아미노피리미딘 (TAP) 및 4,4'-바이프탈릭 안하이드라이드 (BPAD) 또는 3,3', 4,4'-디페닐술폰 테트라카복실릭 디안하이드라이드 (DSDA)을 가열하고 교반하여 반응시키고; (2) 다시 자일렌을 첨가하여 반응시키고; (3) 알코올을 가하여 침전시키고; 및 (4) 침전물을 여과하여 건조시키는; 과정으로 이루어진 상기 고수지형 폴리이미드를 얻는 제조방법을 제공한다.
- <40> 상기 (1) 과정에서는 온도 30℃ 내외 범위로 가열하는 것이 바람직하며 질소 분위기 하에서 15 시간 내외로 교반하는 것도 바람직하다. 또한, 상기 (2) 과정에서 자일렌은 온도 160℃ 내외로 반응시간 7시간 내외로 반응시키는 것이 바람직하고, 상기 (3) 과정에서는 냉각시키고 메탄올을 첨가하는 것이 바람직하다.
- <41> 이하, 실시예에 의하여 본 발명을 더욱 상세히 설명하고자 한다.
- <42> 단, 하기 실시예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용이 하기 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- <43> **실시예 1. 에폭시 수지 혼합 조성물의 물성 조사**
- <44> (1) 열 안정성
- <45> 본 발명의 혼합 조성물에서 경화된 시료의 열 안정성은 TGA 열분석 곡선으로 계산한 열분해 개시온도 (IDT; 중량 감소가 5%일 경우)를 통하여 고찰하였다.
- <46> (2) 유리 전이온도
- <47> 본 발명의 혼합 조성물에서 경화된 시료의 유리 전이온도는 DMA 곡선 상에서 최고점에 이르는 온도를 계산하였다.
- <48> (3) 기계적 물성
- <49> 본 발명의 혼합 조성물에서 경화된 시료의 기계적 물성으로 크랙 성장 저항을 나타내는 임계응력세기 인자 (K_{Ic})를 하기 수학적 식 1 에 따라 측정하였다.

수학적 식 1

- <50>
$$K_{Ic} = PWB^{1/2} Y$$
- <51> 여기서, P 는 하중, B 는 시편의 두께, W 는 시편의 너비 그리고 l 는 크랙의 길이, 크랙의 위치 및 하중 방법에 의존하는 기하학적 요소 (geometric factor)를 각각 나타낸다.
- <52> 또한, 상기 경화된 시료의 충격 강도도 이조드 충격 시험기 (Izod impact tester; Toyoseki Co.)를 사용하여 측정하였다.
- <53> **제조예 1. 고수지형 폴리이미드의 제조 I**
- <54> 본 발명에서는 고수지형 폴리이미드를 실험실에서 합성하여 사용하였고, 이 때 시약은 알드리치 화학 (Aldrich Co. Ltd.)으로부터 구입한 일급 제품을 사용하였다. 먼저 2,4,6-트리아미노피리미딘 (TAP) 0.375 g (3 mmol), 4,4'-바이프탈릭 안하이드라이드 (BPAD) 0.883 g (3 mmol) 및 DMAc 15 ml를 500 ml 반응기에 넣고 30℃로 가열한 후, 질소 분위기 하에서 15시간 동안 교반하였다. 여기에 다시 m-자일렌 10 ml 을 첨가하여 160℃에서 7시간 동안 반응시키고 반응 혼합물을 상온으로 냉각한 다음 메탄올을 가하여 황색 침전물을 얻었다. 이와 같이 얻은 침전물은 필터로 여과하고 80℃ 진공 하에서 24시간 동안 건조시킨 다음 아민-말단의 BPAD-TAP 고수지형 폴리이미드를 제조하였다 (수율: 83%). 상기 고수지형 폴리이미드의 물성은 하기 표 1에 측정하여 나타내었다.
- <55> **제조예 2. 고수지형 폴리이미드의 제조 II**

<56> 상기 제조예 1와 동일한 과정으로 4,4'-바이프탈릭 안하이드라이드 대신에 3,3', 4,4'-디페닐술폰 테트라카복실릭 디안하이드라이드 (DSDA) 1.075 g (3 mmol)을 사용하여 아민-말단의 DSDA-TAP 고수지형 폴리이미드를 제조하였다 (수율: 82%). 상기 고수지형 폴리이미드의 물성은 하기 표 1에 측정하여 나타내었다.

표 1

	수평균 분자량	중량평균 분자량	가지화도	유리전이 온도(℃)	열안정성 인자 T _{5%} (℃)	열안정성 인자 T _{10%} (℃)
제조예 1	8,850	10,500	0.32	272	464	494
제조예 2	8,100	9,300	0.34	270	457	486

<58> 실험예 1. 에폭시 수지 혼합조성물의 제조 I

<59> 이관능성 에폭시 수지 DGEBA (diglycidyl ether of bisphenol A; 국도화학(주) 제품 YD-128; 밀도 1.17 g/cm³, 점도 14,000 cps, 당량 EEW 185 내지 190 g/eq) 98 중량%에 상기 제조예 1에서 얻은 BPAD-TAP 고수지형 폴리이미드 2 중량%를 혼합하고 이로부터 얻은 에폭시 혼합조성물에 경화제로 디아미노 디페닐 메탄 (diamino diphenyl methane; DDM)를 첨가하여 시편을 제작하였다. 이때 경화 조건은 110℃에서 1시간, 150℃에서 2시간, 180℃에서 1시간으로 실시하였다. 상기 혼합 조성물의 시료에서 TGA 변화 및 DMA 변화는 도 1 및 도 2에 나타내었다. 그 결과, IDT 및 T_g 값이 각각 358 및 195℃로 측정되어 순수 DGEBA 에폭시 수지와 비교하여 각각 0 및 3% 씩 증가한 것을 확인할 수 있었다.

<60> 상기에서 제조한 시편으로 만든 재료 시험기 (universal test machine #1125)를 사용하여 변형속도는 2 mm/분으로 지지대 간 거리와 시편 두께의 비는 4 : 1로 고정하여 각 조성물의 파괴 인성을 임계응력 세기인자 (K_{IC})으로 측정하였다. 그 결과, 임계응력 세기인자 (K_{IC})는 1.62 kPa · m^{1/2}로 나타나 순수 DGEBA 에폭시 수지에 비해 128% 정도 증가한 것을 확인하였다.

<61> 또한, 상기에서 제조한 시편으로 이조드 충격 시험기 (Izod impact tester; Toyoseki Co.)를 사용하여 측정된 충격 강도를 측정하였다. 그 결과, 충격 강도는 25.1 J/m로 나타나 순수 DGEBA 에폭시 수지에 비해 65% 정도 증가한 것을 알 수 있었다.

<62> 실험예 2. 에폭시 수지 혼합조성물의 제조 II

<63> 이관능성 에폭시 수지 DGEBA (국도화학(주) 제품) 96 중량%에 상기 제조예 1에서 얻은 BPAD-TAP 고수지형 폴리이미드 4 중량%를 사용한 것을 제외하고는 상기 실험예 1과 동일한 과정을 수행하여 에폭시 수지/고수지형 폴리이미드 혼합 조성물을 얻고 상기 실시예에서 제시한 물성 시험들을 실시하였다. 그 결과, IDT는 361℃로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 1% 증가하고, T_g는 196℃로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 3% 증가하였으며, K_{IC}는 1.76 kPa · m^{1/2}로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 148% 증가하고, 충격 강도는 27.3 J/m로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 80% 증가한 것을 확인하였다.

<64> 실험예 3. 에폭시 수지 혼합조성물의 제조 III

<65> 이관능성 에폭시 수지 DGEBA (국도화학(주) 제품) 94 중량%에 제조예 1에서 얻은 BPAD-TAP 고수지형 폴리이미드 6 중량%를 사용한 것을 제외하고는 상기 실험예 1과 동일한 과정을 수행하여 에폭시 수지/고수지형 폴리이미드 혼합조성물을 얻은 다음 상기 실시예에서 제시한 물성 시험들을 실시하였다. 그 결과, IDT는 363℃로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 1% 증가하고, T_g는 198℃로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 4% 증가하며, K_{IC}는 1.73 kPa · m^{1/2}로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 144% 증가하고, 충격 강도는 25 J/m로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 65% 증가한 것을 확인하였다.

<66> 실험예 4. 에폭시 수지 혼합조성물의 제조 IV

<67> 이관능성 에폭시 수지 DGEBA (국도화학(주) 제품) 92 중량%에 상기 제조예 1에서 얻은 BPAD-TAP 고수지형 폴리이미드 8 중량%를 사용한 것을 제외하고는 상기 실험예 1과 동일한 과정을 수행하여 에폭시 수지/고수지형 폴리이미드 혼합 조성물을 얻고 상기 실시예에서 제시한 물성 시험들을 실시하였다. 그 결과, IDT는 360℃로 측정되

어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 0% 증가하고, T_g 는 192℃로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 1% 증가하며, K_{IC} 는 $1.74 \text{ kPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 145% 증가하고, 충격 강도는 25.6 J/m로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 68% 증가한 것을 확인하였다.

<68> **실시예 5. 에폭시 수지 혼합조성물의 제조 V**

<69> 상기 제조예 2에서 얻은 DSDA-TAP 고수지형 폴리이미드를 사용한 것을 제외하고는 상기 실험예 1과 동일한 과정을 수행하여 에폭시 수지/고수지형 폴리이미드 혼합조성물을 얻고, 상기 실시예에서 제시한 물성 시험들을 실시하였다. 그 결과, IDT는 358℃로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 0% 증가하고, T_g 는 193℃로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 2% 증가하며, K_{IC} 는 $1.65 \text{ kPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 132% 증가하고, 충격강도는 25.4 J/m로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 67% 증가한 것을 확인하였다.

<70> **실시예 6. 에폭시 수지 혼합조성물의 제조 VI**

<71> 상기 제조예 2에서 얻은 DSDA-TAP 고수지형 폴리이미드를 사용한 것을 제외하고는 상기 실험예 2과 동일한 과정을 수행하여 에폭시 수지/고수지형 폴리이미드 혼합 조성물을 얻고, 상기 실시예에서 제시한 물성 시험들을 실시하였다. 그 결과, IDT는 360℃로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 0% 증가하고, T_g 는 194℃로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 2% 증가하며, K_{IC} 는 $1.77 \text{ kPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 로 측정되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 149% 증가하고, 충격강도는 27.5 J/m로 조사되어 DGEBA 에폭시 수지에 비해 81% 증가한 것을 확인하였다.

<72> 도 3 및 도 4에 나타난 바와 같이, HBPI의 함량이 0.5 중량% 미만일 경우에는 상기 혼합조성물의 물성이 순수 DGEBA 에폭시 수지의 물성치와 비교하여 크게 증가하지 않으나, HBPI 함량이 20 중량%를 넘으면 혼화성의 저하로 인하여 물성 감소 현상이 현저하게 나타나는 것을 알 수 있었다. 실제로 상기 혼합조성물에서 HBPI 함량이 증가하면서 점도가 증가하여 혼화성이 감소되고, HBPI의 함량이 약 4 중량%인 경우 수지의 임계응력 세기인자(K_{IC}) 및 충격 강도가 최대값에 이른다. 따라서, 본 발명에서는 DGEBA 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 HBPI 0.5 내지 20 중량%로 구성되는 혼합조성물이 열 안정성 및 기계적 물성 등을 효과적으로 개선시키는 것으로 판단하였다.

발명의 효과

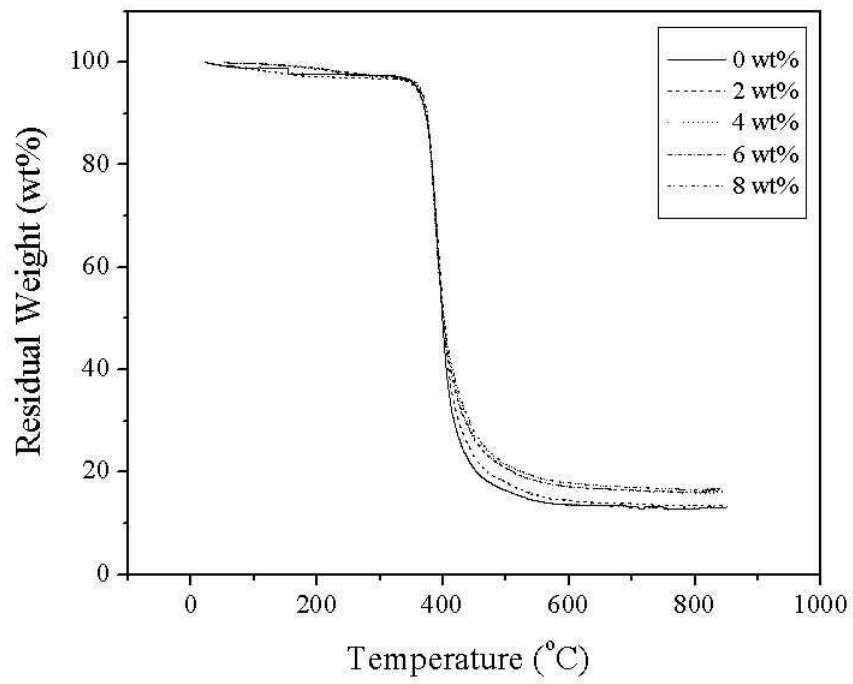
<73> 상술한 바와 같이, 본 발명은 에폭시 수지 80 내지 99.5 중량% 및 고수지형 폴리이미드 0.5 내지 20 중량%로 구성되어 열적 및 기계적 특성이 우수한 에폭시 수지 혼합조성물 및 그의 제조방법에 관한 것으로서, 상기 혼합조성물은 종래의 에폭시 수지보다 취성을 포함한 기계적 물성 및 열 안정성이 월등히 향상되어 경제적인 측면뿐만 아니라 에폭시 수지를 대체하는 고기능성 구조용 매트릭스 수지 등으로 널리 사용될 수 있어 유용하다.

도면의 간단한 설명

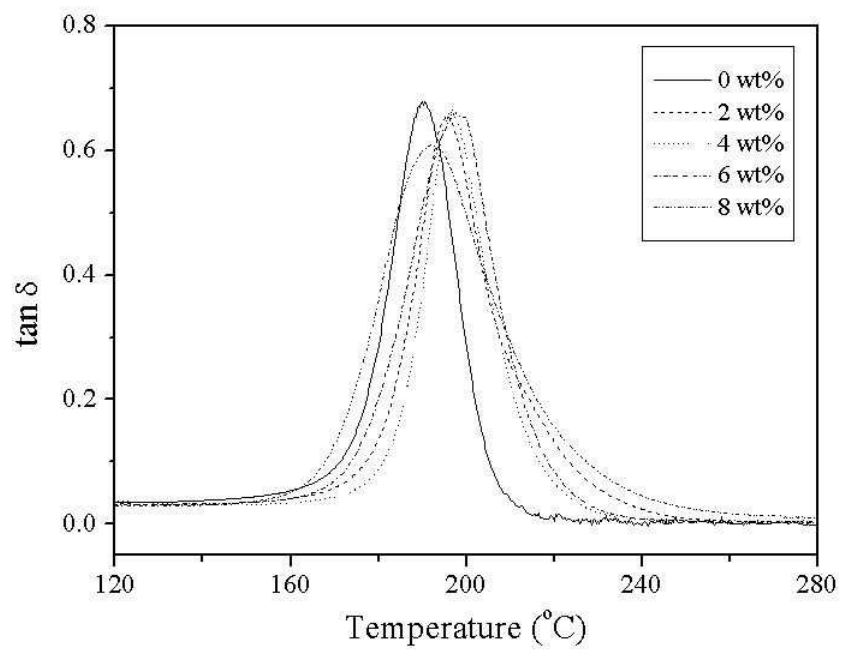
- <1> 도 1 은 본 발명의 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물에서 고수지형 폴리이미드 (HBPI) 함량에 따른 TGA 변화를 나타낸 것이다.
- <2> 도 2 는 본 발명의 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물에서 HBPI 함량에 따른 유리전이온도의 변화를 나타낸 것이다.
- <3> 도 3 은 본 발명의 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물에서 HBPI 함량에 따른 임계응력 세기인자 K_{IC} 값의 변화를 나타낸 것이다.
- <4> 도 4 는 본 발명의 고수지형 폴리이미드를 첨가한 에폭시 수지 혼합조성물에서 HBPI 함량에 따른 충격 강도의 변화를 나타낸 것이다.

도면

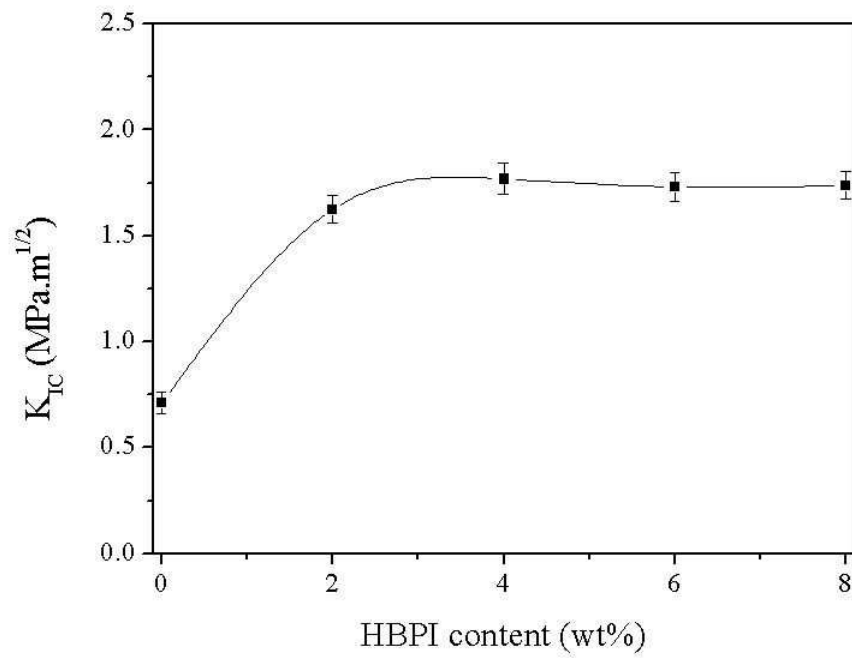
도면1



도면2



도면3



도면4

