

## 표면처리 실리카를 충전한 에폭시 수지계의 물성에 관한 연구 :

### II. 에폭시 수지 경화물의 물성

홍 석 표 · 최 상 구

전북대학교 공과대학 공업화학과  
(1990년 8월 27일 접수)

## Physical Properties of Epoxy Resin Filled with Surface-treated Silica : II. Properties of Cured Epoxy Resin

Suk-Pyo Hong and Sang-Goo Choi

Department of Chemical Technology, Chonbuk National University, Chonju 560-756, Korea  
(Received August 27, 1990)

### 요 약

$\gamma$ -Glycidoxy propyl trimethoxy silane, CTBN rubber (carboxyl terminated butadiene acrylonitrile rubber), GMA (glycidyl methacrylate) 등을 TEA (triethylamine) 및 BPO (benzoyl peroxide) 존재하에 결정성 실리카의 표면에 단계적으로 반응시켜 2.5~5.8% (중량%)의 피복율을 가진 표면처리 실리카를 제조하였다. 이것을 전체 혼합물 중 0~60% (중량%)가 되도록 에폭시 수지 및 MTHPA (methyltetrahydrophthalic anhydride)와 혼합한 후 경화시켜 굴곡특성 및 열적특성을 시험하였다. 시험결과, 충전재 함량 35~55% (중량%)에서, 실란/고무 또는 실란/고무/비닐로 처리된 실리카를 충전한 것은 에폭시 수지에 고무를 직접 3% 혼합하고 여기에 표면 처리하지 않은 실리카를 충전한 것에 비하여 굴곡강도와 Tg는 각각 평균 25%, 13% 높은 값을, 굴곡탄성율은 5% 낮은 값을 나타내었다.

**Abstract :**  $\gamma$ -Glycidoxy propyl trimethoxy silane, CTBN rubber (carboxyl terminated butadiene acrylonitrile rubber) and GMA (glycidyl methacrylate) were reacted with the surface of silica one by one in existence of TEA (triethylamine) or BPO (benzoyl peroxide). The amount of reactant was 2.5~5.8% of treated silica weight. The treated silica was mixed with epoxy resin and MTHPA (methyltetrahydrophthalic anhydride) in the range of 0~60% (wt. %) of total component. The flexural and thermal properties were tested for cured products. In filler content 35~55%, the using of silica treated with silane/rubber or silane/rubber/vinyl represented 25% higher flexural strength, 5% lower flexural modulus and 13% higher than mixing liquid rubber 3% with epoxy resin containing untreated silica.

## 1. 서 론

에폭시 수지는 가공시 높은 온도에서 경화되고 상온에서 급냉각됨에 따라 발생하는 잔류열응력에 의하여, 경화물내에 크레이즈 (craze) 나 크랙 (crack) 이 형성되는 것이 큰 문제로 되어 있다[1~4]. 일반적으로 잔류열응력은 다음과 같은 Nielsen 의 식[5]으로 정리될 수 있는데

$$\delta = K \alpha_1 E_1 (T_g - T_1),$$

$\delta$ : 열응력,

$K$ : 상수,

$\alpha_1$ :  $T_g$  이상의 어떤 온도에서의 에폭시 수지의 선 팽창계수,

$E_1$ :  $T_g$  이상의 어떤 온도에서의 에폭시 수지의 탄성율,

$T_g$ : 유리전이온도,

$T_1$ :  $T_g$  이하의 어떤 온도.

이러한 잔류열응력을 낮추기 위해서는  $T_g$ 의 낮춤, 선팽창계수의 낮춤, 탄성율의 낮춤 등의 방법이 있지만 물성상 서로 연관성이 있기 때문에 잔류열응력을 낮추는 문제는 그리 간단하지가 않다. 그 중에서도 일반적으로는 에폭시 수지에 액상고무를 혼합하여 재료를 저탄성율화시키는 방법에 의하여 잔류열응력을 낮추는 방법이 가장 많이 사용되고 있다. 이러한 분야의 연구로는 1970년 Rowe, Siebert, Drake 등[6]이 고분자 말단에 카르복시기를 가진 부타디엔 고무를 에폭시 수지에 혼합하여 혼합특성 및 기계적 물성에 관한 연구를 처음 발표한 이래, 아크릴계 고무[7], 실리콘계 고무[8] 등을 혼합하거나 공중합을 통하여 IPN's 구조[9] 및 sea-island 구조[10]를 형성시켜 저탄성율화시키는 연구들이 현재까지도 진행되고 있다. 그러나 이러한 방법은 저탄성율화는 가능하지만 대체적으로 고강도 유지가 어렵고  $T_g$ 의 저하가 수반되며 충전재의 분산성, 급형의 오염성, 심한 상분리현상, 수축율의 증대, 경화물 표면의 끈적거림 등이 문제로 지적되고 있다.

따라서 본 연구에서는 잔류열응력에 의하여 발생하는 크레이즈나 크랙은 탄성율 및 선팽창율이 서로 다른 충전재와 수지의 계면에서 주로 발생된다는 사실에 착안하여[11, 12] 표면처리한 실리카를 사용하는

방법을 연구하였다. 실험내용으로는 우선 실리카의 표면을 실란, 부타디엔 고무, 비닐단량체 등으로 차례로 반응시켜 표면처리 실리카를 제조하였다. 그리고 이것을 에폭시 수지에 전체 조성물 중 0~60% (중량%)의 범위로 충전하여 열경화시킨 후 저탄성율화 효과를 비롯하여 기계적 성질, 열적 성질, 파단면 등을 시험하였다.

## 2. 실험

### 2. 1. 재료 및 시약

실리카는 한국화인세라믹 (주)의 silica filler 200F (평균 입자사이즈: 8~9  $\mu\text{m}$ , 비중: 2.22)을 사용하였고, 실란은 U.C.C.의 A 187  $\gamma$ -glycidoy propyl trimethoxy silane)을 사용하였다. 액상고무는 B.F. Goodrich의 CTBNx8 (carboxyl terminated butadiene acrylonitrile rubber, 분자량: 3500)을 사용하였고, 비닐단량체는 서울화성(주)의 GMA (glycidyl methacrylate)를 사용하였다. 에폭시 수지는 고려화학(주)의 Korepoxy R-8828 (당량: 182~192)을 사용하였고, 경화제는 Nippon Zeon의 MTHPA (methyltetrahydrophthalic anhydride)를 사용하였다. 경화촉진제는 1B2MZ (1-benzyl 2-imidazole)을 사용하였고, 소포제는 신월실리콘(주)의 KS 603을 사용하였다.

### 2. 2. 실리카의 표면처리

#### 2. 2. 1. 실리카의 실란처리[13, 14]

(1) 이소프로판올 100.0 g,  $p$ -디옥산 35.0 g, 증류수 15.0 g, 실란(A 187) 1.0 g을 4구 플라스크에 차례대로 넣고 교반하여 혼합한 다음, 빙초산 5.7 g으로 용액의 pH를 3~5로 조절하고  $65 \pm 5^\circ\text{C}$ 에서 1시간,  $75 \pm 5^\circ\text{C}$ 에서 1시간 동안 실란을 가수분해시켰다. (2) 실리카 100.0 g을 덩어리가 생기지 않도록 소량씩 교반시키면서 넣은 다음,  $75 \pm 5^\circ\text{C}$ 에서 30분 동안 실리카의 표면에 가수분해된 실란을 표면흡착시켰다. (3) 액상성분을 반응물의 윗면으로부터 분리시킨 후 젖은 실리카를 상온에서 1일 건조시킨 다음,  $120 \pm 5^\circ\text{C}$ 의 건조로에서 진공도 3~5 torr로 3시간 동안 감압 건조시켰다. (4) 막자 사발을 이용하여 분쇄하고 300 mesh 체로 걸러 통과분을 밀봉 포장하였다.

### 2. 2. 2. 실란처리 실리카의 액상고무처리

(1) *m*-크실렌 50.0 g, CTBNx8 3.0 g, TEA (triethylamine) 1.0 g 을 차례대로 넣고 실란처리된 실리카 100.0 g 을 덩어리가 생기지 않도록 소량씩 교반하면서 넣었다. (2) 140~150 °C 에서 3 시간 동안 반응시켰다. (3) 과량의 크실렌으로 실리카의 표면에 묻어있는 미반응물을 제거한 다음, 실란처리에서와 같은 방법으로 건조 및 분쇄하고 포장하였다.

### 2. 2. 3. 실란/고무처리 실리카의 비닐단량체 처리

(1) *m*-크실렌 50.0 g, GMA 3.0 g, DMA(N, N-dimethyl aniline) 0.05 g, BPO 1.0 g 을 차례대로 넣고 실란/고무처리된 실리카를 덩어리가 생기지 않도록 소량씩 교반시키면서 넣었다. (2) 125 ± 5 °C 에서 3 시간 동안 반응시켰다. (3) 과량의 크실렌으로 반응촉매 및 미반응물을 충분히 제거한 다음, 실란처리에서와 같은 방법으로 건조 및 분쇄하고 포장하였다.

### 2. 3. 혼합물의 분산 및 경화

(1) R-8828/MTHPA/1B2MZ/KS603 을 50/45/0.4/0.5 로 하여 300 rpm 에서 2 분간 균일하게 혼합하였다. (2) 표면처리한 실리카를 전체혼합물 중 0~60 % 가 되도록 넣고 3000 rpm 에서 30 분간 고속분산기로 분산시킨 다음, 진공도 3 torr 로 40 ± 5 °C 에서 30 분간 감압 탈포시켰다. (3) 간격 3.2 ± 0.1 mm 의 유리판 성형기에 혼합액을 붓고 건조로에서 80 ± 5 °C 에서 2 시간 동안 경화시킨 다음, 120 ± 5 °C 에서 2 시간 동안 후경화시켰다.

### 2. 4. 물성시험

굴곡강도 및 굴곡탄성율은 ASTM D790 의 시험방법에 따라 길이 80 ± 1 mm, 폭 25 ± 0.2 mm, 두께 3.2 ± 0.1 mm 의 시험편을 제작하여 용량 5 ton 의 만능시험기로 측정하였다. 시험시 하강속도 (crosshead speed) 는 2 mm/min 으로 하였으며, 시험편 지지대는 길이 100 mm, 폭 50 mm, 골 깊이 50 mm 의 것을 사용하였다. T<sub>g</sub> 는 DuPont 9900 열분석기로 측정하였는데 승온 속도는 2 °C/min 로 하였다. 경화물의 과단면은 전자현미경 (Hitachi S-510) 을 사용하여 조사하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3. 1. 굴곡강도

Fig. 1 은 표면처리제의 종류에 따라 굴곡강도를 시험한 것인데, 굴곡강도는 A 187/CTBNx8/GMA 처리 > A 187/CTBNx8 처리 > A 187 처리 > 무처리의 순서로 높은 값을 나타내었다. A 187/CTBNx8/GMA 처리의 것이 가장 높은 값을 가지는 것은 실리카의 표면에 관능기를 가진 유기물로 충분히 피복되어 있으므로 실리카-피복물-에폭시 사이가 양호하게 결합되어, 파괴될 때 단위 시간당 크레이즈나 크랙의 발생량이 상대적으로 적었기 때문인 것으로 생각된다. A 187 처리물이 A 187/CTBNx8 처리물보다 낮은 값을 가지는 것은 실란이 고무보다 화학구조적인 면에서 불 배 신율이 작기 때문에 수직하중에 대하여 버티지 못하였기 때문인 것으로 추측된다. 굴곡강도는 실리카 함량 20 % 까지는 감소하다가 40~50 % 에서 최대값을 나타내었고, 60 % 이상에서는 거의 유사한 값을 나타내었다. 이것은 20 % 이하의 저충전시에는 신율이 작은 실리카가 에폭시의 인장변형을 차단하므로 전

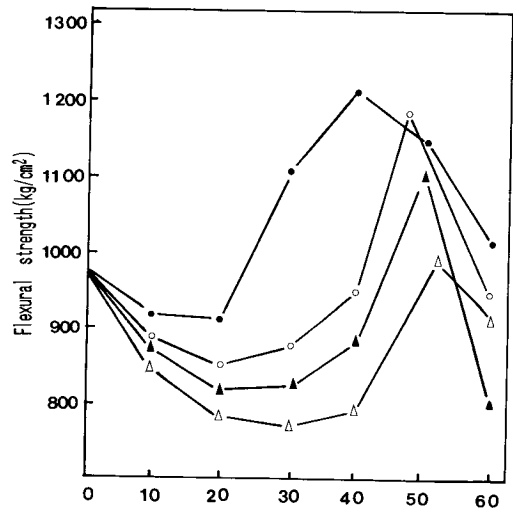


Fig. 1. Flexural strength vs. filler content : (△) untreated; (▲) A 187 treated; (○) A 187/CTBNx8 treated; (●) A 187/CTBNx8/GMA treated. Resin composition : R 8828/MTHPA/1B2MZ/KS603=50/45/0.4/0.5, Cure condition : 80 °C × 2hrs and 120 °C × 2hrs. Crosshead speed : 2 mm/min.

체적으로 비균일하게 응력이 분산되어 강도가 감소된 것으로 판단되고, 40~50%에서 최대값을 가지는 것은 전체적으로 양호한 분산상태를 이루고 있기 때문이며, 60%에서 낮아지는 것은 고충전으로 인하여 분산상태가 불량해져 충전제간에 접촉부분이 많아져 기공의 형성량이 많아졌기 때문인 것[15, 16]으로 판단된다.

Fig. 2는 A 187/CTBNx8 처리 및 A 187/CTBNx8/GMA 처리 실리카를 충전한 것과 CTBNx8 고무를 직접 에폭시 수지에 전체 액상성분 중 각각 1%, 3%, 5%의 비율로 혼합하고 여기에 처리하지 않은 실리카를 충전한 것의 굴곡강도를 비교한 것이다. 고무를 직접 혼합한 경우에는 고무가 증량될수록 굴곡강도는 감소하였는데, 이것은 고분자량의 고무가 투입됨에 따라서 섞임성이 점차 불량해져 가교밀도가 떨어졌기 때문인 것으로 풀이된다. 실리카의 표면에 고무를

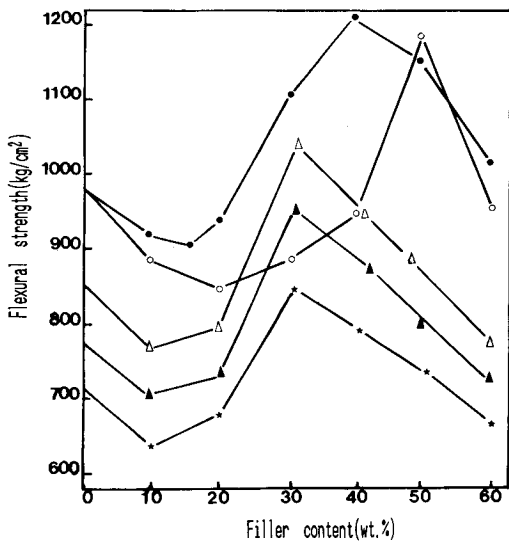


Fig. 2. Flexural strength vs. filler content on addition type of rubber: (○) A 187/CTBNx8 treated silica; (●) A 187/CTBNx8/GMA treated silica; (△) direct-mixed with CTBNx8 rubber 1%; (▲) direct-mixed with CTBNx8 rubber 3%; (★) direct-mixed with CTBNx8 rubber 5%. Resin composition: R 8828/MTHPA/1B2MZ/KS603=50/45/0.4/0.5, cure condition: 80 °C × 2hrs and 120 °C × 2hrs. Crosshead speed: 2 mm/min.

처리한 것이 충전재 함량 40~50%의 고충전시에도 높은 값을 나타낸 것은 고무가 충전재 표면에 반응되어 있기 때문에 고무의 분산상태가 양호하며 탈포가 용이하고 아울러 경화온도나 시간에 따라 고무입자의 크기가 변하지 않았기 때문인 것으로 판단된다. 충전재 함량 0~20%에서 고무를 직접 에폭시 수지에 혼합하고 처리하지 않은 실리카를 충전한 것이 표면 처리한 실리카를 충전한 것보다 낮은 값을 가지는 것은 표면처리의 것에 비하여 사용된 고무의 양이 더 많았고, 침전율이 더 높았으며, 용해도 파라미터 차이에 의한 상분리[17]가 쉽게 일어났기 때문인 것으로 생각된다. 일반적으로 복합재료에서 주로 사용되는 충전재 함량 35~55%에서 볼 때, 표면처리한 것에 사용된 고무의 양은 액상성분 중 1.1~3.6%로서 이것은 CTBNx8 고무를 직접 에폭시 수지에 3% 혼합한 것보다 고무양은 적은데도 굴곡강도에서 평균 25% 더 높은 값을 나타내었다.

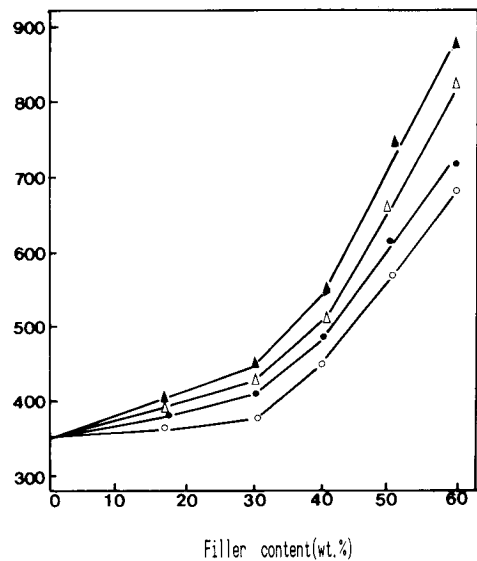


Fig. 3. Flexural modulus vs. filler content: (△) untreated; (▲) A 187 treated; (○) A 187/CTBNx8 treated; (●) A 187/CTBNx8/GMA treated. Resin composition: R 8828/MTHPA/1B2MZ/KS603=50/45/0.4/0.5, cure condition: 80 °C × 2hrs and 120 °C × 2hrs. Crosshead speed: 2 mm/min.

### 3. 2. 굴곡탄성율

Fig. 3은 표면처리제의 종류에 따라 굴곡탄성율을 시험한 것이다. 탄성율은 A 187 처리 > 무처리 > A 187/CTBNx8/GMA 처리 > A 187/CTBNx8 처리의 순서로 액상고무처리시 탄성율이 가장 낮았고, A 187/CTBNx8/GMA 처리의 것은 높은 굴곡강도를 가지면서도 상당히 낮은 탄성율을 나타내었다. 이것은 실리카의 표면에 처리된 고무가 실리카의 계면에서 발생하는 분할효과, 불연속효과, 산란효과, 응력집중효과 등을 완화시키며 파괴될 때 에너지를 흡수하였기 때문인 것으로 판단된다[18]. 탄성율은 전체적으로 충전재의 양이 많아질수록 증가하였는데, 이것은 선펡창율이 작은 실리카가 충전됨에 따라 재료가 단단하게 변하면서 선펡창율이 작아지고 파괴시 하중에 의한 인장변형을 실리카가 방해하였기 때문인 것으로 풀이된다. 그리고 탄성율의 증가폭을 보면 충전재 함량 0~40%의 저충전시에는 거의 비슷한 증가를 보였지만 50% 이상에서는 처리제에 따른 변화가 뚜렷하게 나타났다. 이것은 고충전으로 갈수록 처리제의 양이 증가되고 처리제가 실리카의 계면에서 처리제 고유의 성질을 나타내었기 때문인 것으로 생각된다.

Fig. 4는 A 187/CTBNx8 처리 및 A 187/CTBNx8/GMA 처리 실리카를 충전한 것과 CTBNx8 고무를 직접 에폭시 수지에 전체 액상성분 중 각각 1%, 3%, 5%의 비율로 혼합하고 여기에 처리하지 않은 실리카를 충전한 것의 굴곡탄성율을 비교한 것이다. 실리카 함량 30% 이하의 저충전시에는 표면처리실리카를 사용한 것이 CTBNx8 고무를 직접 혼합한 것보다 낮게 나타났다. 이것은 고무가 실리카의 표면에 처리되어 있기 때문에 실리카의 충전율이 낮으면 상대적으로 고무를 직접 혼합한 것보다 고무의 함량도 적어지기 때문이라고 생각된다. 30% 이상에서는 고무를 직접 혼합한 것보다 A 187/CTBNx8 처리물의 것은 탄성율이 낮았고, A 187/CTBNx8/GMA 처리물의 것은 유사한 값을 보여 주었다.

이것은 실리카의 함량이 많아짐에 따라서 고무의 양도 증가하여 고무가 충분한 응력완화역활을 하였기 때문이며, 에폭시 수지에 고무를 직접 혼합한 것은 고무가 에폭시수지와 IPN's 구조를 이루지만 실리카의 표면에 처리하여 투입한 것은 sea-island 구조를 이루기 때문에 응력완화효과도 보다 크게 작용하였기 때문이라고 풀이된다. 충전재 함량 35~55%에서

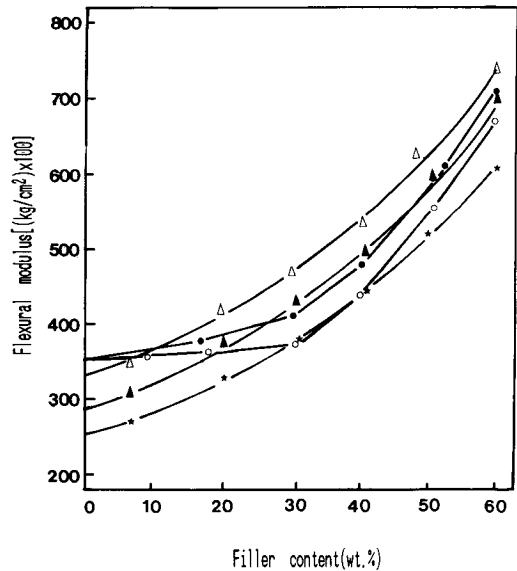


Fig. 4. Flexural modulus vs. filler content on the addition type of rubber: (○) A 187/CTBNx8 treated silica; (●) A 187/CTBNx8/GMA treated silica; (△) direct-mixed with CTBNx8 rubber 1%; (▲) direct-mixed with CTBNx8 rubber 3%; (★) direct-mixed with CTBNx8 rubber 5%. Resin composition: R 8828/MTHPA/1B2MZ/KS603=50/45/0.4/0.5, cure condition: 80 °C × 2hrs and 120 °C × 2hrs. Crosshead speed: 2mm/min.

실제 사용된 고무의 함량을 조사해보면 표면처리실리카의 경우 고무의 함량은 액상성분 중 1.1~3.6%로서 전체적으로 보면 에폭시 수지에 직접 CTBNx8 고무를 3% 혼합한 것보다도 적은 고무함량임에도 불구하고 굴곡탄성율은 평균 5% 낮은 값을 나타내었다.

### 3. 3. Tg (유리전이온도)

Fig. 5는 표면처리제의 종류에 따라 Tg를 측정된 것인데, A 187/CTBNx8 처리물을 제외하고는 전체적으로 충전재의 함량이 많아질수록 Tg는 증가하였지만, 충전재 함량 50% 이상에서는 급격한 감소현상을 보였다. A 187/CTBNx8 처리물이 충전재의 함량이 많아짐에 따라 낮은 Tg를 보이는 것은 충전재의 함량이 증가할수록 상대적으로 고무의 함량도 증가

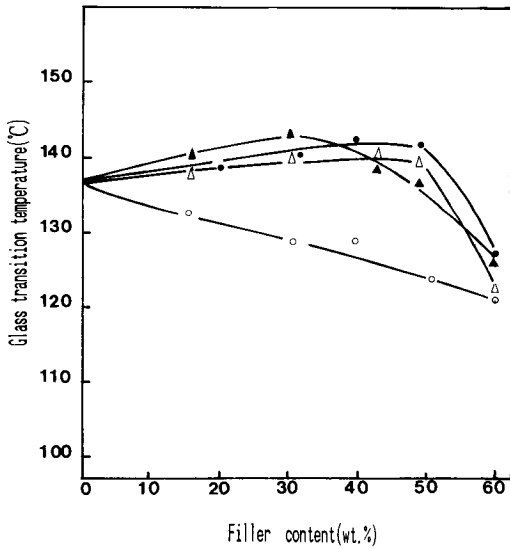


Fig. 5. Glass transition temperature vs. filler content : (Δ) untreated ; (▲) A 187 treated ; (○) A 187/CTBNx8 treated ; (●) A 187/CTBNx8/GMA treated. Resin composition : R 8828/MTHPA/1B2MZ/KS603 = 50/45/0.4/0.5, cure condition : 80 °C × 2 hrs and 120 °C × 2hrs.

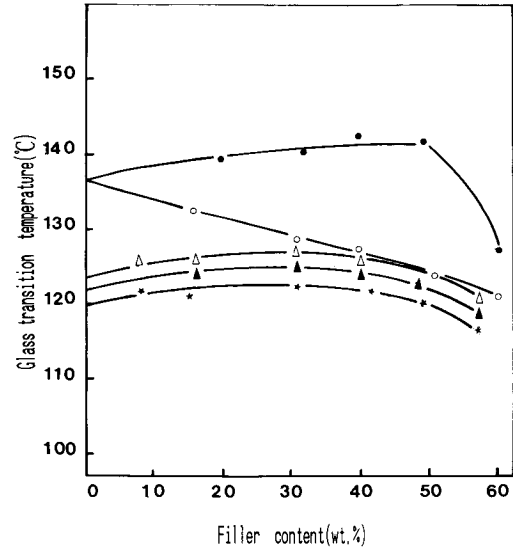


Fig. 6. Glass transition temperature vs. filler content on the addition type of rubber : (○) A 187/CTBNx8 treated silica ; (●) A 187/CTBNx8/GMA treated silica ; (Δ) direct-mixed CTBNx8 rubber 1% ; (▲) direct-mixed CTBNx8 rubber 3% ; (★) direct-mixed with CTBNx8 rubber 5%. Resin composition : R 8 828 /MTHPA/1B2MZ/KS603 = 50/45/0.4/0.5, cure condition : 80 °C × 2 hrs and 120 °C × 2 hrs.

하여 전체적으로 경화물의 가교밀도가 떨어졌기 때문인 것으로 풀이된다. 50% 이상의 고충전시에 Tg 값이 낮아지는 것은 충전재와 수지간의 불균일접착에 의한 불연속상의 생성으로 인하여 충전재의 보강효과를 그만큼 떨어뜨리기 때문인 것으로 생각된다.

Fig. 6은 A 187/CTBNx8 처리 및 A 187/CTBNx8/GMA 처리 실리카를 충전한 것과 CTBNx8 고무를 직접 에폭시 수지에 전체 액상성분 중 각각 1%, 3%, 5%의 비율로 혼합하고 여기에 처리하지 않은 실리카를 충전한 것의 Tg를 비교한 것이다. CTBNx8 고무를 직접 에폭시 수지에 혼합한 것은 고무의 함량이 1%에서 5%로 증가할수록 경화물의 Tg는 더 낮은 값을 나타내었고, 표면처리실리카의 경우에는 A 187/CTBNx8 처리물을 제외하고는 거의 유사한 값을 나타내었다. 그리고 전체적으로는 실리카 함량 40%까지는 충전재의 양이 증가할수록 Tg는 증가하였다. Frissel과 Krautz 등[19, 20]은 이와같은 입자 충전에 의한 Tg의 증가는 탄성률의 증가에 의한 것이며 또한

고온 크리프의 감소에 의한 것이라고 발표한 바 있다. 충전재 함량 35~55%에서 CTBNx8 고무를 실리카의 표면에 처리하여 사용한 것은 직접 에폭시 수지에 혼합한 것에 비하여 평균 10% 정도 높은 Tg를 보여주었는데, 이것은 표면처리한 것이 직접 투입한 것보다 고무의 분산에 있어서 더 작은 크기로 분산되어 sea-island 구조를 형성하였기 때문인 것으로 풀이된다.

### 3. 4. 파단면

Fig. 7은 표면처리 실리카를 50% 충전한 에폭시 수지 경화물의 파단면을 전자현미경으로 찍은 사진이다. 처리하지 않은 실리카를 사용한 것(A)이나 A 187을 처리한 실리카를 사용한 것(B)은 충전재가 파단면의 표면에 돌출되어 있으며, 충전재 주변의

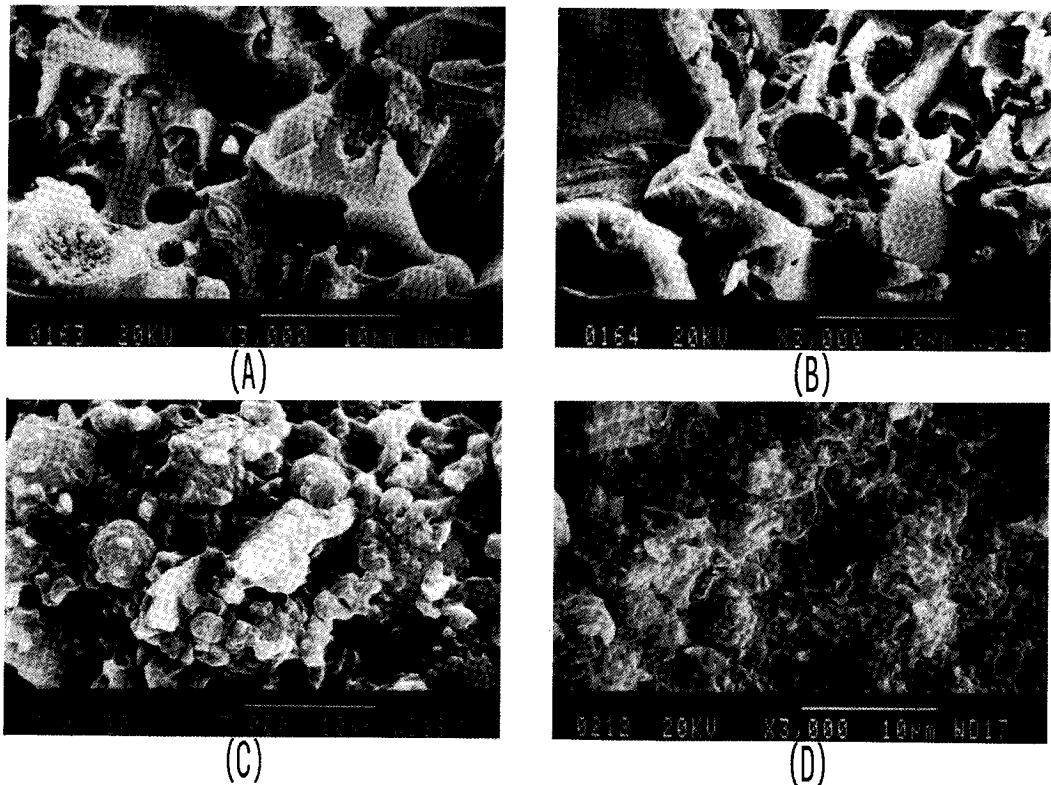


Fig. 7. Fracture surfaces of epoxy resin filled with surface treated silica : (A) untreated ; (B) A 187 treated ; (C) A 187/CTBNx8 treated ; (D) A 187/CTBNx8/GMA treated.

에폭시상은 매우 매끈한 형태를 이루고 있었다. A 187/CTBNx8 처리의 것(C)은 실리카의 표면피복물과 에폭시 수지의 반응에 의하여 생성된 크기 10 $\mu$ m의 반응물들이 군집을 이루고 있음을 볼 수 있었으며, A 187/CTBNx8/GMA 처리의 것(D)은 A 187/CTBNx8 처리의 것보다 크기가 작은 5 $\mu$ m 정도의 군집들을 볼 수 있었다. 이러한 군집들은 상분리 및 화학적 반응에 의하여 생성되며 기계적 성질 및 열역학적 성질에 영향을 미치는데, 액상고무 혼합시에는 고무 입자가 작을수록 기계적 물성이 우수하고 높은 Tg를 갖는 것으로 되어 있다[21, 22].

#### 4. 결 론

실란( $\gamma$ -glycidoxy propyl trimethoxy silane), 액상고무(carboxyl terminated butadiene acrylonitrile

rubber, 분자량 : 3500), 비닐단량체(glycidyl methacrylate) 등으로 표면처리한 실리카를 에폭시 수지(비스페놀 A형, 당량 : 182~192) 및 산무수물(methyltetrahydrophthalic anhydride)과 0~60%(중량%)로 충전하여 저탄성율화효과를 비롯한 굴곡강도, 굴곡탄성율, 유리전이온도, 파단면 등을 연구한 결론은 다음과 같다.

(1) 굴곡탄성율은 실리카의 충전량이 많아질수록 증가하였으며, 굴곡강도와 Tg(유리전이온도)는 실리카 함량 30~50%에서 가장 높은 값을 나타내었다.

(2) 실리카의 표면을 실란/고무 또는 실란/고무/비닐로 처리하여 충전한 것은 에폭시 수지에 직접 액상고무를 3% 혼합하고 표면처리하지 않은 실리카를 충전한 것보다 충전재 함량 35~55%에서 평균 25% 높은 굴곡 강도, 13% 높은 유리전이온도, 5% 낮은 굴곡탄성율을 나타내었다.

(3) 실란/고무 또는 실란/고무/비닐처리한 실리카는 처리하지 않은 실리카나 실란처리한 실리카에 비하여 충전재와 수지 사이에 보다 양호한 결합상태를 나타내었다.

### 참 고 문 헌

1. S. B. Jang, *Polymer(Korea)*, **4**, 115(1980).
2. S. S. Lee, K. S. Jung and J. K. Yeo, *Polymer(Korea)*, **11**, 2(1987).
3. J. Lilley and D. G. Holloway, *Phil. Mag.*, **21**, 215 (1973).
4. L. E. Nielsen and T. B. Lewis, *J. Polym. Sci.*, **7**, 1705(1969).
5. 高田憲一, "Nikkei new materials", 325(1987).
6. E. H. Rowe, A. R. Siebert and R. S. Drake, *Mod. Plast.*, **47**, 110(1970).
7. S. B. Ronald, "Epoxy Resin Chem. II", *ACS Symposium Series*, **221**, p. 69, (1983).
8. A. K. Gilbert and S. W. Kantor, *J. Polym. Sci.*, **40**, 35(1959).
9. J. G. Lee, *Lucky Polym. Tech.*, **5**, 60(1988).
10. W. D. Bascom, R. L. Cottingham, R. L. Jones and P. Peyster, *J. Appl. Polym. Sci.*, **19**, 2545(1975).
11. 横堀武夫, 成澤廓夫, 高分子材料強度學, オーム社, 97~104, 1982.
12. W. A. Zisman, "Contact angle, Wetting and Adhesion", *Am. Chem. Soc.*, p. 1, 1984.
13. U. C. C., Technical Bulletin, 1988.
14. W. A. Zisman, *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.*, **8**, 98(1969).
15. J. U. Lee, *Polymer(Korea)*, **12**, 1(1988).
16. W. C. Jin, *Polymer(Korea)*, **12**, 605(1988).
17. J. K. Leou, *Lucky Polym. Tech.*, **4**, 10(1988).
18. M. Yokouchi, H. Uchiyama and Y. Kobayashi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **25**, 1007(1980).
19. W. J. Frissel, *Plast. Tech.*, **2**, 135(1962).
20. F. G. Krautz, *J. SPE*, **27**, 74(1971).
21. A. R. Siebert and C. K. Rien, *Am. Chem. Soc.*, **16**, 552(1971).
22. J. A. Sayre, E. H. Rowe and R. R. Lagasse, *Polymer*, **22**, 87(1981).