

## 에폭시 접착제의 내수성, 열적 및 기계적 물성에 관한 연구

김 종 학\* · 최 길 영\* · 주 혁 종\*\* · 김 범 용 · 박 수 진†

한국화학연구원 화학소재연구부

\*한국화학연구원 신뢰성평가센터, \*\*충남대학교 고분자공학과  
(2005년 5월 4일 접수, 2005년 7월 12일 수정 및 채택)

### A Study on the Water Resistance and Thermo-mechanical Behaviors of Epoxy Adhesives

Jong-Hak Kim\*, Kil-Yeong Choi\*,

Hyek-Jong Joo\*\*, Fan-Long Jin, Soo-Jin Park†

Advanced Materials Division, Korea Research Institute of Chemical Technology

P.O. Box 107, Yusong, Daejeon 305-600, Korea

\*Reliability Assessment Center, Korea Research Institute of Chemical Technology

P.O. Box 107, Yusong, Daejeon 305-600, Korea

\*\*Department of Polymer Science and Engineering, Chungnam National University

Deajeon 305-764, Korea

(Received May 4, 2005, Revised & Accepted July 12, 2005)

요약 : 본 논문에서는 세가지 종류의 경화제 (D-230, G-5022 및 HN-2200)를 사용하여 열화가 에폭시 접착제의 질량변화 및 흡수량에 미치는 영향을 고찰하였다. 경화된 시편의 열적 및 기계적 특성은 유리전이온도와 전단강도 측정을 통하여 알아보았다. 실험 결과, D-230와 HN-2200를 경화제로 사용하였을 경우 열화 시간이 시스템의 질량 변화에 영향을 주지 않았으며, G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 질량은 열화 시간에 따라 현저하게 감소하였다. 열화 이전의 DGEBA/G-5022 시편을 제외하고 모든 시편의 흡수량은 시간에 따라 점차 증가하였다. 또한, DGEBA/HN-2200 시스템이 제일 높은  $T_g$  값을 나타내었으며, 이는 경화된 시스템이 지방족 고리를 함유한 3차원 네트워크 구조를 형성한 것으로 판단된다. 에폭시 수지의 접착 강도는 열화 시간에 따라 점차 증가하였으며, 이는 에폭시 수지의 경화도 증가와 보다 발달된 3차원 네트워크 구조의 형성에 기인한다. 또한, 내수 실험 후 열화 전후의 모든 시편의 유리전이온도와 전단접착강도는 흡수시간에 따라 감소하였다.

**ABSTRACT :** Effect of thermal aging on the weight loss and water absorption of epoxy adhesives was investigated in the presence of three types of different hardeners, such as D-230, G-5022, and HN-2200. Thermal and mechanical properties of the cured epoxy resins were also studied through the glass transition temperature and shear adhesion strength measurements. Weight losses of DGEBA/D-230 and DGEBA/HN-2200 systems were not varied. However, the weight of DGEBA/G-5022 system was significantly decreased with increasing the thermal aging time. The water absorption of the specimens was increased as the thermal aging time increased except that using G-5022. DGEBA/HN-2200 system showed higher  $T_g$  value than those of other systems, due to the formation of the fine three-dimensional network structure containing

† 대표저자(e-mail : psjin@kRICT.re.kr)

aliphatic ring. Shear adhesion strength of all systems was increased with increasing the thermal aging time, which is attributed to increased degree of cure and fine three-dimensional network structure formation. And  $T_g$  values and shear adhesion strength of all specimens exposed to water was decreased as the immersion time increased.

*Keywords : epoxy resin, glass transition temperature, adhesive, water absorption, weight loss*

## I. 서 론

에폭시 수지는 접착력, 기계적 물성, 내화학성이 우수하고 경화시 수축변형이 적으며 부산물이 생성되지 않는 장점으로 인하여 섬유복합재료의 매트릭스, 코팅, 구조용 접착제, 전기·전자부품 재료 등에 널리 사용되고 있다. 특히, 비스페놀계의 에폭시 수지는 구조용 접착제로서 항공기, 선박, 자동차에서 전기·전자부품에 이르기까지 다양하게 사용되어 왔다.<sup>1,2</sup>

에폭시 접착제는 보통 에폭시 수지와 경화제가 혼합되어 있는 일액형으로 공급되고 있으며, 접착 소재로는 구리나 알루미늄 등의 금속이 주로 사용되고 있다. 일반적으로 일액형 에폭시 접착제는 가열을 통해 가교 반응이 진행된다. 경화제는 상온에서 반응하지 않고 고온에서 반응하는 아민, 아미드, 유기산무수물, 이미다졸, 폐놀, 잠재성 개시제 등이 사용되고 있고, 경화촉진제로는 삼차 아민, 우레아, 멜라민 등이 사용되고 있다.<sup>3-8</sup>

한편, 에폭시 접착제의 경화도와 물성은 수지 및 경화제의 종류와 경화조건(반응시간 및 온도)에 의해 결정되며, 환경중 수분의 영향도 크게 받는다. 고분자가 조습한 환경에 노출될 경우 물 분자는 쉽게 고분자 매트릭스에 침투하여 접착제의 유리전이온도를 저하시키고, 기계적 물성을 감소시킬 수 있다.<sup>9,10</sup> 따라서 사용하는 에폭시 수지와 경화제의 기초물성, 경화조건 및 내수성에 대한 연구가 선행되어야 에폭시 접착제의 경화도와 물성에 미치는 영향을 파악할 수 있으며, 원하는 물성을 얻을 수 있는 경화제의 선택과 최적의 경화조건의 확립이 가능해 진다. 에폭시 접착제의 내수성 연구에 의하면 아민에 의해 경화된 에폭시 수지의 흡수량은 흡수시간에 따라 증가하다가 감소하는 경

향을 나타내었다.<sup>11</sup> 통상 사용하고 있는 아민형 경화제 대신에 크롬 경화제를 사용하면 에폭시 수지의 항복강도, 충격저항, 그리고 접착강도가 증가된다는 연구결과도 보고되었다.<sup>12</sup> 또한 에폭시 수지에 carboxyl-terminated butadiene (CTBN), nano-alumina 등을 첨가하여 접착제의 열적 및 기계적 특성과 접착 특성을 증가시키는 연구도 활발히 진행되었다.<sup>13-15</sup>

아민을 에폭시 수지의 경화제로 사용할 경우 경화속도가 빠르고 표면경도가 높은 특성을 나타내며, 산무수물을 경화제로 사용할 경우 내열성 및 우수한 전기적 성질을 나타낸다. 또한, 폴리아마이드를 에폭시 수지의 코팅 및 접착제의 경화제로 사용할 경우 우수한 접착력, 인성, 내수성 및 내화학성을 나타낸다.

본 연구에서는 세가지 종류의 경화제를 사용하여 열화 시간에 따른 질량감소, 흡수량, 유리전이온도 및 접착력을 측정하였고 이를 흡습거동, 열적 및 기계적 물성과 연관시켜 고찰하였다. 또한, 내수 실험에 따른 물성 변화를 조사하기 위하여 흡수시간이 에폭시 접착제의 유리전이온도 및 접착강도에 미치는 영향을 고찰하였다.

## II. 실 험

### 1. 재 료

2관능성 에폭시 수지는 상업적으로 시판되는 국도화학의 YD-128 (diglycidylether of bisphenol-A, DGEBA, EEW=185(190 g/eq, d=1.16 g/cm<sup>3</sup>)를 사용하였으며, 경화제는 국도화학의 아민계의 D-230 (Jeffamine), 아마이드계의 G-5022 (활성 수소의 당량 235 (265 g/eq), 그리고 산무수물계의 HN-2200 (3 or 4-methyl-1,2,3,6-tetrahydrophthalic anhydride)를 정

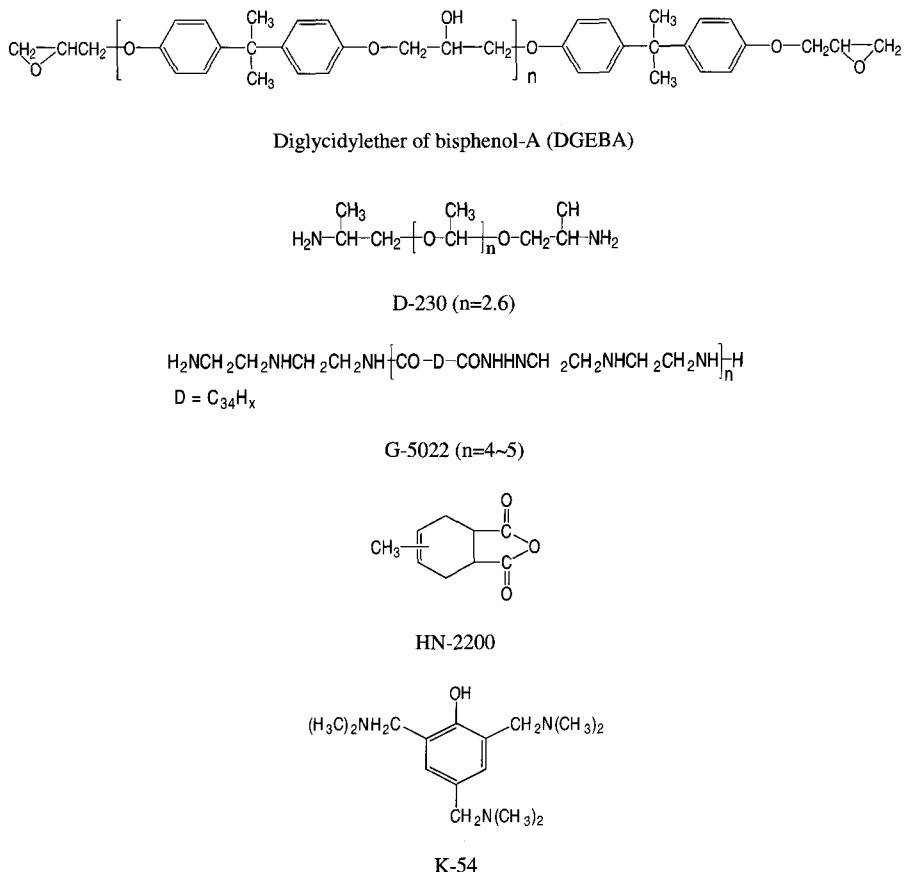


Figure 1. Chemical structures of the materials used.

제하지 않고 그대로 사용하였다. 산무수물 HN-2200를 사용시에는 3차 아민계인 K-54 [2,4,6-tris(dimethylaminomethyl)phenol]를 경화촉진제로 사용하였다. 본 연구에 사용된 에폭시 수지 DGEBA, 경화제 D-230, G-5022X70, HN-2200, 그리고 경화촉진제 K-54의 화학 구조식을 Figure 1에 나타내었다.

## 2. 시편제조

DGEBA 에폭시 수지와 경화제를 당량비율로 혼합하여 사용하였으며, 산무수물 경화제 사용시에는 1%의 K-54를 경화촉진제로 사용하였다. 에폭시 수지를 완전히 녹인 후 80 °C의 온도에서 경화제와 혼합하였다. 투명한 혼합물이 얼어질 때까지 교반시키고 진공 오븐에서 감압하여 기포 등을 탈기시

킨 후 분석에 사용하였다. 혼합한 시료를 2 mm 두께의 알루미늄 금형에 주입하여 120 °C에서 4시간 경화시켰다. 제조된 접착제 시트는 저속 다이아몬드 절단기를 이용하여 25×25 mm<sup>2</sup> 크기로 절단하여 시편을 만들었다.

## 3. 열화 시험

에폭시 수지의 열화는 120 °C를 유지할 수 있는 오븐에서 시편이 서로 겹치지 않도록 배열하여 28 일 동안 열화시켰다. 열화 시간에 따른 시편의 무게변화는 분석저울을 이용하여 관찰하였다.

## 4. 침수 시험

경화물의 흡수도는 시간의 함수로서 증류수에

노출시킨 후 무게증가로 결정하였다. 접착제 시편의 작은 조각 ( $25 \times 25 \times 2 \text{ mm}^3$ )들은 5개가 한조가 되어  $40^\circ\text{C}$ 의 증류수로 채워진 항온조에 침수시켰다. 모든 시편들은 서로 접촉하지 않도록 하였으며, 다양한 시간간격 (1, 2, 4, 7, 14, 28, 35, 49일)에서 항온조에서 시편을 꺼내어 시편의 표면에 묻은 물만을 침와이프즈를 이용하여 제거한 후  $10^{-5}\text{ g}$ 의 정확도를 갖는 분석저울을 이용하여 무게를 측정하였다. 그리고 다시 항온조에 침수시켜 실험을 계속하였다.

### 5. 유리전이온도 ( $T_g$ ) 측정

경화물의  $T_g$  변화를 관찰하기 위하여 시차 주사 열량계 (TA사의 DSC Q1000)을 이용하여 측정하였다. DSC는 인듐을 이용하여 교정하였으며, He 가스 분위기에서  $30\sim200^\circ\text{C}$  범위에서  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 승온속도로 측정하였다. 시편이 지닌 열이력을 제거하기 위하여 2번 반복하여 측정하였다.

### 6. 접착 시험

접착시편에 사용된 금속 피착재로는 SUS 304 스테인리스 스틸을 사용하였으며, 시편은 ASTM D1002에 의거하여 Figure 2와 같은 모양과 치수(단위 mm)로 제조하였다. 접착제는 에폭시 수지와 3종류의 경화제를 당량 대 당량으로 배합한 후 진공상태에서 기포와 휘발성분을 제거한 후 스테인리스 스틸에 도포한 후 일정한 하중을 가한 상태로  $120^\circ\text{C}$ 에서 4시간 동안 경화시켜 시편을 제조하였다.

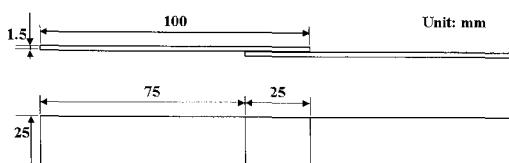


Figure 2. Typical geometry of specimens used in shear tests.

## III. 결과 및 고찰

### 1. 질량 변화

에폭시 수지의 질량 변화는 분석저울을 이용하여 열화 시간에 따른 시편의 무게 측정을 통하여 관찰하였다. 에폭시 시편의 질량 ( $W_t$ )은 아래의 식 (1)을 사용하여 계산하였다.

$$W_t = w_t - w_d \quad (1)$$

여기서  $w_t$ 는 열화 시간  $t$ 에서 측정한 시편의 중량이고,  $w_d$ 는 열화 실험을 시작하기 이전의 건조한 시편의 중량을 나타낸다.

아민, 아마이드, 산무수물 등 세가지 종류의 경화제를 사용하여 열화 시간에 따른 시스템의 질량 변화를 Figure 3에 나타내었다. D-230를 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 질량은 열화 시간에 따라 점차 감소하였으며, HN-2200를 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 질량은 일정하였다. G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 질량은 열화 시간의 증가에 따라 급격하게 감소하다가 점차 일정한 값을 나타내었다. 이 결과로부터 D-230과 HN-2200를 경화제로 사용하였을 경우 열화 시간은 시스템의 질량 변화에 큰 영향이 없었으며, G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 질량은 열화 시간에 따라 현저하게 감소함을 알 수 있었다.

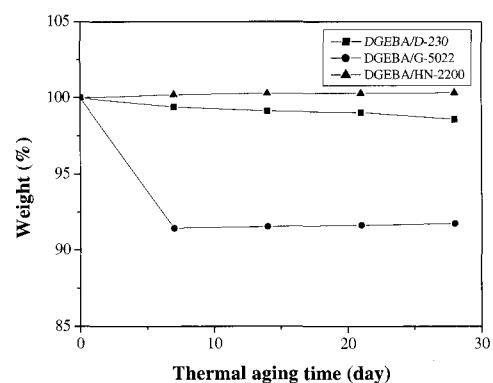


Figure 3. Weight loss of epoxy systems as a function of thermal aging time.

이는 화학 구조상으로 D-230은 측쇄에 상대적으로 부피가 큰 메틸기를, HN-2200는 주사슬에 지방족 고리를 함유하고 있기에 시스템의 질량은 열화 시간에 따라 큰 변화를 나타내지 않았고, 반면에 G-5022는 주사슬에 선형 알킬로 구성되어 있어 시스템의 질량은 열화 시간에 따라 현저하게 감소한 것으로 판단된다.<sup>5,7,16</sup>

## 2. 내수 시험

에폭시 수지의 흡수 거동은 40 °C의 중류수에서 침수 시간에 따른 시편의 무게 변화를 통하여 알아보았으며, 시편의 흡수량 ( $M_t$ )은 아래의 식 (2)을 사용하여 계산하였다.

$$M_t = \frac{m_t - m_d}{m_d} \times 100 \quad (2)$$

여기서  $m_t$ 는 흡수 시간  $t$ 에서 측정한 시편의 중량이고,  $m_d$ 는 내수 실험을 시작하기 이전의 건조한 시편의 중량을 나타낸다.

Figure 4는 세가지 종류의 경화제를 사용하여 침수 시간에 따른 에폭시 수지의 흡수량 변화를 나타내었다. Figure 4 (a)에서 D-230을 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 흡수량은 열화 전후 모두 시간에 따라 점차 증가하였다. 이는 물 분자가 고분자 매트릭스에 침투되어 단순한 첨가 반응이 일어나 시편의 무게가 증가한 것으로 관찰된다.<sup>10</sup> HN-2200을 경화제로 사용하였을 경우, Figure 4 (c)에 나타낸 바와 같이, 시스템의 흡수량은 경화제 D-230을 사용한 경우와 비슷한 경향을 보였으며, 흡수량은 경화제 D-230을 사용한 경우보다 적었다. 한편, G-5022을 경화제로 사용하였을 경우 시스템의 흡수량은 열화 이전에는 시간의 증가에 따라서 서서히 증가하다가 감소하였으나 열화 이후에는 현저하게 증가하였으며, D-230과 HN-2200보다 더 높은 흡수량을 나타내었다 [Figure 4 (b)]. G-5022 경화제를 사용한 에폭시가 열화이전에 흡수량이 감소한 이유는 물 분자의 침투로 고분자 매트릭스의 일부분에 가수분해가 일어나 네트워크 구조에서 분리되어 시편의 무게가 감소된 것으로 판단된다.<sup>10</sup>

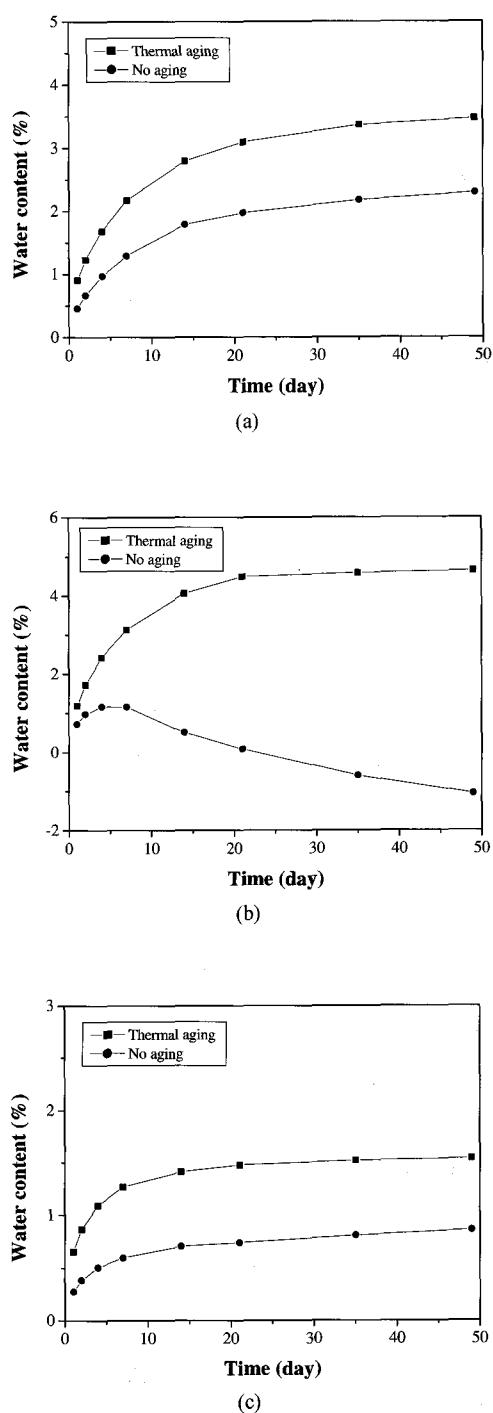


Figure 4. Water absorption of specimens as a function of time: (a) DGEBA/D-230, (b) DGEBA/G-5022, and (c) DGEBA/HN-2200.

또한, 열화 이전의 DGEBA/G-5022 시편을 제외하고 모든 시편이 21일 이후에는 일정한 흡수량을 나타냄을 알 수 있었다. 이 결과로부터 물 분자가 에폭시 수지의 네트워크 구조에 침투는 서서히 진행되었으며, 21일 이후에는 에폭시 수지의 흡수가 평형에 도달하였음을 알 수 있었다.

### 3. 경화물의 유리전이온도

시차 주사 열량계를 사용하여 세가지 종류의 경화제에 의해 경화된 에폭시 수지의 유리전이온도 ( $T_g$ )를 측정하였으며, 그 결과를 Figure 5 (a)에 나타내었다. 그림에서 D-230과 G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 경화물의  $T_g$  값은 열화 시간에 따라 서서히 감소하다가 일정한 값을 나타내었다.

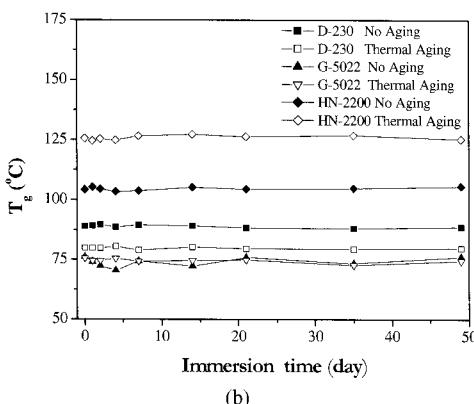
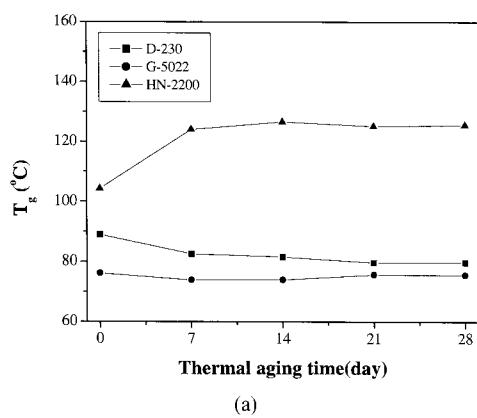


Figure 5. Glass transition temperature of samples as a function of aging time (a), and immersion time (b).

반면에 HN-2200을 경화제로 사용하였을 경우  $T_g$  값은 열화 시간의 증가에 따라 점차 증가하다가 일정한 값을 보였다. 이 결과로부터 D-230과 G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 에폭시 수지의  $T_g$  값은 열화 시간의 영향을 적게 받았으며, HN-2200을 경화제로 사용하였을 경우 에폭시 수지의  $T_g$  값은 열화 시간의 영향을 크게 받았음을 알 수 있었다. 또한, DGEBA/HN-2200 시스템이 제일 높은  $T_g$  값을 보였으며, DGEBA/G-5022 시스템이 제일 낮은  $T_g$  값을 나타내었다. 이는 HN-2200를 경화제로 사용할 경우 다른 경화제와 달리 지방족 고리를 함유한 3차원 네트워크 구조를 형성하였으며, DGEBA/G-5022 시스템의 경우에는 선형 알킬로 네트워크 구조를 형성하였기 때문인 것으로 판단된다.<sup>5,7,16</sup> 또한, 모든 시편은 14일 열화 이후에는 일정한 유리전이온도를 나타냄을 알 수 있었다.

Figure 5 (b)는 40 °C의 중류수에서 내수 실험을 시행한 후 시편의  $T_g$  변화를 측정한 결과를 나타내었다. 내수 실험후 열화 전후의 모든 시편의  $T_g$ 는 흡수시간에 따라 약간 감소하다가 일정한 값을 나타내었다. 이는 물 분자가 에폭시 네트워크 구조에 침투하여 에폭시 구조의 가소화 현상을 일으키기 때문인 것으로 판단된다.<sup>10</sup>

### 4. 접착력

Table 1은 열화 시간에 따른 에폭시 접착제의 전단접착강도(Shear Adhesion Strength)의 변화를 나타내었다. 열화 시간에 따라 DGEBA/D-230, DGEBA/G-5022, 그리고 DGEBA/HN-2200 시스템의 접착강도는 점차 증가하였다. 이는 열화 시간에 따라 에폭시 수지의 경화도 증가와 보다 발달된 3차원 네트워크 구조의 형성으로 인하여 시스템의 접착강도가 증가한 것으로 관찰된다.<sup>5</sup>

Table 1. Shear Adhesion Strength ( $\text{kg}/\text{mm}^2$ ) of Specimens as a Function of Thermal Aging Time

| Time (day)    | 7    | 14   | 21   | 28   |
|---------------|------|------|------|------|
| DGEBA/D-230   | 1.35 | 1.38 | 1.40 | 1.42 |
| DGEBA/G-5022  | 1.0  | 1.02 | 1.05 | 1.07 |
| DGEBA/HN-2200 | 1.20 | 1.21 | 1.25 | 1.30 |

**Table 2. Shear Adhesion Strength (kg/mm<sup>2</sup>) of Specimens as a Function of Immersion Time**

| Time (day)    |                      | 0    | 1    | 2    | 4    | 7    | 14   |
|---------------|----------------------|------|------|------|------|------|------|
| DGEBA/D-230   | After thermal aging  | 1.42 | 1.38 | 1.35 | 1.34 | 1.32 | 1.30 |
|               | Before thermal aging | 1.29 | 1.28 | 1.22 | 1.18 | 1.08 | 1.08 |
| DGEBA/G-5022  | After thermal aging  | 1.07 | 1.08 | 0.99 | 0.92 | 0.83 | 0.20 |
|               | Before thermal aging | 1.43 | 1.36 | 1.29 | 1.27 | 1.25 | 0.97 |
| DGEBA/HN-2200 | After thermal aging  | 1.30 | 1.21 | 1.18 | 1.14 | 1.06 | 1.00 |
|               | Before thermal aging | 0.82 | 0.81 | 0.80 | 0.79 | 0.67 | 0.65 |

40 °C의 중류수에서 내수 실험을 시행한 후 시편의 접착력 변화를 측정한 결과를 Table 2에 나타내었다. 실험결과, 내수 실험후 열화 전후의 모든 시편의 전단접착강도는 흡수시간에 따라 점차 감소하였다. 이는 물 분자가 에폭시 네트워크 구조에 침투하여 에폭시 구조의 가소화 현상을 일으키기 때문인 것으로 판단된다.<sup>10</sup> 또한, 열화시킨 DGEBA/G-5022 시편을 제외한 모든 시편의 접착력은 7일 침수 이후에는 큰 변화가 없음을 알 수 있었다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 아민, 아마이드, 산무수물 등 세 가지 종류의 경화제를 사용하여 열화가 에폭시 수지의 중량 변화, 흡수량, 유리전이온도, 그리고 접착력에 미치는 영향을 고찰하였다. 또한, 에폭시 수지의 내수성이 유리전이온도 및 접착력에 미치는 영향을 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수가 있었다.

1. D-230와 HN-2200를 경화제로 사용하였을 경우 열화 시간은 에폭시 수지의 질량 변화에 큰 영향이 없었으며, G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 에폭시 수지의 질량은 열화 시간에 따라 현저하게 감소하였다.

2. 열화 이전의 DGEBA/G-5022 시편을 제외하고 모든 시편의 흡수량은 시간에 따라 점차 증가하였으며, 21일 이후에는 일정한 값을 나타내었다.

3. D-230과 G-5022를 경화제로 사용하였을 경우 에폭시 수지의  $T_g$  값은 열화 시간에 따라 큰 변화가 없었으며, HN-2200을 경화제로 사용하였을 경

우 에폭시 수지의  $T_g$  값은 열화 시간에 따라 점차 증가하였다.

4. 열화 시간에 따라 에폭시 수지의 접착강도는 점차 약간씩 증가하였으며, 이는 에폭시 수지의 경화도 증가와 보다 발달된 3차원 네트워크 구조의 형성에 기인한다.

5. 흡수량의 증가에 따라 에폭시 접착제의 유리전이온도가 낮아지고 기계적 물성이 저하되었으며, 이는 물 분자가 에폭시 매트릭스 수지에 침투하여 네트워크 구조의 가소화 현상을 일으킨 것으로 판단된다.

6. 내수성, 내열성 및 기계적 물성 결과로부터 산무수물 경화제 HN-2200가 실용적으로 가장 효과적임을 알 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

- R. S. Bauer, "Epoxy Resin Chemistry", Advanced in Chemistry Series, No. 114, p. 1, American Chemical Society, Washington DC, 1979.
- C. A. May, "Epoxy Resins, Chemistry and Technology", p. 1, Marcel Dekker, New York, 1988.
- S. J. Park, F. L. Jin, and J. S. Shin, "Physicochemical and Mechanical Interfacial Properties of Trifluoromethyl Groups Containing Epoxy Resin Cured with Amine", Mater. Sci. Eng. A, **390**, 240 (2005).
- S. G. Hong and J. S. Tsai, "The Effect of Metal Surfaces on the Adsorption and Degradation Behavior of an Epoxy/amidoamine System", Macromol. Mater. Eng., **276-277**, 59 (2000).

5. S. J. Park and F. L. Jin, "Thermal Stabilities and Dynamic Mechanical Properties of Sulfone-containing Epoxy Resin Cured with Anhydride", *Polym. Degrad. Stab.*, **86**, 515 (2004).
6. J. Fröhlich, D. Golombowski, R. Thomann, and R. Mulhaupt, "Synthesis and Characterisation of Anhydride-cured Epoxy Nanocomposites Containing Layered Silicates Modified with Phenolic Alkylimidazolineamide Cations", *Macromol. Mater. Eng.*, **289**, 13 (2004).
7. A. M. Matawie and E. M. Sadek, "Adhesives and Coatings Based on Phenolic/Epoxy Resins", *Polym. Adv. Technol.*, **10**, 223 (1999).
8. S. J. Park, F. L. Jin, and J. R. Lee, "Synthesis and Thermal Properties of Epoxidized Vegetable Oil", *Macromol. Rapid Commun.*, **25**, 724 (2004).
9. C. Maggana and P. Pissis, "Water Sorption and Diffusion Studies in an Epoxy System", *J. Polym. Sci.: Part B, Polym. Phys.*, **37**, 1165 (1999).
10. G. Z. Xiao and M. E. R. Shanahan, "Water Absorption and Desorption in an Epoxy Resin with Degradation", *J. Polym. Sci.: Part B, Polym. Phys.*, **35**, 2659 (1997).
11. R. A. Pethrick, E. A. Hollins, I. McEwan, E. A. Pollock, and D. Hayward, "Effect of Cure Temperature on the Structure and Water Absorption of Epoxy/amine Thermosets", *Polym. Inter.*, **39**, 275 (1996).
12. I. Novák, J. Šimoníková, and I. Chodák, "Adhesive Properties of Epoxy Resin with Chromic Hardener", *Macromol. Mater. Eng.*, **286**, 191 (2001).
13. J. H. Klug and J. C. Seferis, "Phase Separation on the Performance of CTBN-Toughened Epoxy Adhesives", *Polym. Eng. Sci.*, **39**, 1837 (1999).
14. S. J. Park, S. J. Seok, J. G. Kang, and S. H. Kwon, "Cure Behaviors and Mechanical Interfacial Properties of Epoxy/polyurethane Blends Initiated by Latent Thermal Catalyst", *Elastomer*, **39**, 42 (2004).
15. E. N. Gilbert, B. S. Hayes, and J. C. Seferis, "Nano-alumina Modified Epoxy Based Film Adhesives", *Polym. Eng. Sci.*, **43**, 1096 (2003).
16. J. Lukaszczuk and K. Jaszczyk, "Synthesis and Characteristics of Biodegradable Epoxy-Polyester Resins Cured with Glutaric Anhydride", *Macromol. Chem. Phys.*, **230**, 301 (2002).