

原位制备 PEI/SiO₂ 复合材料及其改性环氧树脂的研究*

张 晶 史伟超 谢续明**

(清华大学化工系高分子所 先进材料教育部重点实验室 北京 100084)

摘 要 在 *N,N*-二甲基乙酰胺/四氢呋喃 (DMAc/THF) 混合溶剂中, 在正硅酸乙酯 (TEOS) 存在条件下, 通过溶胶-凝胶法原位制备了聚醚酰亚胺 (PEI)/SiO₂ 复合材料. 在该复合材料中, 当 SiO₂ 含量低于 20 wt% 时, 透射电镜 (TEM) 和扫描电镜 (SEM) 的观察表明, SiO₂ 纳米粒子可以均匀分散, 粒径可在 80 ~ 300 nm 间调控. 差示扫描量热法 (DSC) 和热重分析 (TGA) 的结果表明, SiO₂ 纳米粒子的引入使 PEI 的玻璃化转变温度 (T_g) 和热分解温度 (T_d) 明显提高. 将不同 SiO₂ 含量的 PEI 与环氧树脂及固化剂共混并固化, 采用扫描电镜 (SEM) 研究了 SiO₂ 含量对体系相分离形貌的影响, 结果表明 SiO₂ 纳米粒子的引入将使 PEI 分散相尺寸减小. 动态力学分析 (DMTA) 和冲击测试的结果表明, 使用 PEI/SiO₂ 复合材料改性环氧树脂, 可以在提高韧性的同时达到提高模量的效果.

关键词 溶胶-凝胶, 聚醚酰亚胺, 复合材料, 环氧树脂

环氧树脂是一种具有高强度和优良的粘接性能、应用广泛的热固性工程材料. 但因其固化过程中产生高度交联, 使分子链间活动能力变小, 导致脆性大、冲击强度低、易开裂等问题, 限制了其应用范围, 故对环氧树脂进行增韧改性十分必要^[1-4].

将热塑性聚合物添加到环氧树脂中通常可以增加材料的韧性, 但同时可能会降低材料的强度和热稳定性^[5-7]. 因此近年来研究者将更多的注意力转向了用耐热性好、力学性能优异的热塑性工程塑料来增韧环氧树脂的工作上, 以期达到在提高基体韧性的同时保持高强度和热稳定性的目标^[8]. 常用的该类树脂包括聚醚砜 (PES)^[9-11]、聚醚酰亚胺 (PEI)^[12,13]、聚酰亚胺 (PI)^[14]、聚碳酸酯 (PC)^[15] 和聚醚酮 (PEK)^[16] 等.

另一方面, 如果向环氧树脂体系中引入均匀分散的无机纳米粒子, 则可能同时提高其韧性、模量和尺寸稳定性^[17-20], 但如何实现纳米粒子在聚合物中的均匀分散一直是一个难题. 溶胶-凝胶法^[21] (sol-gel) 是制备无机/有机聚合物杂化材料的主要方法之一. 该方法指的是将烷氧金属或金属盐等前驱物在一定的条件下水解缩合成溶胶 (sol), 然后经溶剂挥发或加热使溶胶转化为网状结构的氧化物凝胶 (gel) 的过程^[22]. 溶胶-凝胶法反应条件温和, 过程易于控制, 有利于组分的均

匀混合. 用于制备无机/有机杂化材料时, 通常使用前驱物和有机聚合物的共溶剂, 在聚合物存在的条件下, 在共溶体系中使前驱物水解和缩聚, 从而得到无机纳米粒子在有机聚合物中均匀分散的复合材料^[23,24].

用溶胶-凝胶法制备无机粒子与工程塑料的复合材料, 再用该复合材料对环氧树脂进行改性, 有可能同时体现无机有机两类材料对环氧树脂的改性作用. 本文通过溶胶-凝胶法, 在聚醚酰亚胺 (PEI) 溶液中直接原位生成均匀分布的纳米 SiO₂ 粒子, 并用 TEM 和 SEM 分别观察了粒子在聚合物溶液和复合物中的分布情况. 进而, 将此 PEI/SiO₂ 纳米复合材料引入环氧树脂中, 研究了 SiO₂ 的引入对体系相分离和机械性能的影响.

1 实验部分

1.1 原料

环氧树脂 E-51 为无锡树脂厂产品, 环氧当量为 196; 固化剂二氨基二苯基砜 (DDS) 为上海三爱思试剂有限公司产品, 分子量 248.3, 纯度高于 99%; 聚醚酰亚胺 (PEI) 由 GE 公司提供, 产品牌号为 Ultem 1010; 正硅酸乙酯 (TEOS), 四氢呋喃 (THF), *N,N*-二甲基乙酰胺 (DMAc), 三氯甲烷, 氨水, 苯等均为分析纯, 北京化工厂产品.

* 2010-08-18 收稿, 2010-11-01 修稿; ** 通讯联系人, E-mail: xxm-dce@tsinghua.edu.cn

doi:10.3724/SP.J.1105.2011.10241

1.2 样品制备

1.2.1 溶胶-凝胶法原位制备 PEI/SiO₂ 纳米复合材料

将 PEI 溶解于 DMAc 中, 然后加入适量的 THF (DMAc 和 THF 体积比为 36:54)、水和氨水, 配成 PEI 溶液待用. 配制相同比例的 DMAc/THF 混合溶剂, 与一定量的 TEOS 混合. 在搅拌的条件下用恒压滴液漏斗将上述溶液向 PEI 溶液中匀速滴加, 进行溶胶凝胶反应. 滴加完成后, 继续匀速搅拌 6 h.

在搅拌的条件下向反应液中滴加苯, 将析出物在 60℃ 下真空干燥 1 周, 得到黄色透明的 PEI/SiO₂ 纳米复合材料.

1.2.2 环氧树脂/PEI/SiO₂ 共混物的制备

将 PEI/SiO₂ 复合材料溶解于三氯甲烷中, 再向溶液中加入一定量的环氧树脂和等当量的固化剂 DDS, 搅拌均匀后减压蒸馏除去溶剂, 转入普通烘箱中进行升温固化 (120℃/4 h, 160℃/6 h).

1.3 测试方法

1.3.1 TEM

取 1 滴溶胶-凝胶法制得的 PEI/SiO₂ 溶液滴加到铜网上, 真空干燥后用 Hitachi H-800 透射电镜观察粒子在 PEI 溶液中的粒径和分布.

1.3.2 SEM

干燥后的 PEI/SiO₂ 复合材料在液氮中冷冻 30 min 后进行脆断, 用氢氟酸刻蚀断面.

固化后的环氧树脂/PEI/SiO₂ 样品在液氮中冷冻 30 min 后进行脆断, 用三氯甲烷刻蚀断面.

将断面样品干燥后真空喷金, 用 JSM 7401F 扫描电镜观察.

1.3.3 DSC

实验所用的差示扫描量热仪为日本 Shimadzu 公司的 DSC-60, 以钢为标准样品对仪器温度和热量进行校正. 用铝坩埚称取 3 ~ 5 mg 样品, 在氮气保护下 (30 mL/min), 以 10 K/min 的升温速率从 50℃ 升温到 260℃, 测量玻璃化转变温度 T_g .

1.3.4 TGA

纯 PEI 及其复合物的热失重实验在 Shimadzu 公司的 DTG-60 上进行. 用铂坩埚称取 3 ~ 5 mg 样品, 在氮气保护下 (30 mL/min), 从室温以 20 K/min 的升温速度升温至 800℃, 测量热分解温度 T_d .

1.3.5 流变测试

等温固化过程中环氧改性体系的黏度变化用

Anton Paar Physica MCR301 流变仪测量. 将改性体系样品置于两块直径为 25 mm 的平行铝板间, 然后调整上下板距离为 0.5 mm. 在 120℃ 下开始测试, 测试频率为 10 rad/s, 形变为 0.2%.

1.3.6 动态力学分析测试 (DMTA)

利用 Anton Paar Physica MCR301 对固化后样品的储能模量和玻璃化转变温度进行测试. 采用扭转模式, 测试频率为 1 Hz, 温度范围为 -15 ~ 160℃, 升温速率为 2 K/min, 样条尺寸为 40 mm × 10 mm × 4 mm.

1.3.7 冲击

用 XJJD-5 电子冲击试验机进行冲击测试. 冲击样条截面为 15 mm × 10 mm, 无缺口冲击.

2 结果与讨论

2.1 溶胶-凝胶法原位制备 PEI/SiO₂ 复合物

2.1.1 PEI 浓度对 SiO₂ 粒子粒径及分布的影响

虽然 PEI 不直接参与溶胶-凝胶的过程, 但由于其分子量大, 分子链会对体系黏度和小分子的扩散产生一定影响, 从而影响 SiO₂ 粒子的粒径及其分布. 从图 1 中的 TEM 照片可以看出, 在将 TEOS 浓度固定为 7.4×10^{-3} g/mL 的条件下, 溶胶-凝胶反应体系中没有引入 PEI 时 (图 1(a)), 反应生成的 SiO₂ 粒子粒径约为 50 ~ 60 nm; 随着 PEI 浓度的提高, 制得的 SiO₂ 粒子的粒径逐渐增大. 后续实验使用的均为 PEI 浓度为 0.005 g/mL 的溶液中制得的 PEI/SiO₂ 复合材料 (图 1(b)), 其中 SiO₂ 粒子的平均粒径约为 80 nm.

2.1.2 SiO₂ 在 PEI 中的分散行为

在 PEI 溶液中溶胶-凝胶法生成纳米 SiO₂ 粒子后, 通过沉淀和干燥, 就可以得到 PEI/SiO₂ 纳米复合材料. 用氢氟酸对该复合材料的断面进行刻蚀, 溶解掉其中 SiO₂ 粒子后用 SEM 观察其中粒子的分布情况. 图 2(a)(b) 对应的 SiO₂ 在复合材料中的质量分数分别为 10 wt% 和 20 wt%. 可以看出, SiO₂ 含量在 20 wt% 范围内时, 纳米粒子可以实现均匀分散, 没有团聚现象. 当 SiO₂ 含量达到 25 wt% 时 (图 2(c)), 纳米粒子开始出现一定程度团聚, 而当 SiO₂ 含量继续增大时 (图 2(d)), SiO₂ 出现明显的团聚现象.

2.2 PEI/SiO₂ 复合材料的热性能

通过 DSC 和 TGA 研究了 SiO₂ 含量对于 PEI 的玻璃化转变温度 (T_g) 和热分解温度 (T_d) 的影响, 测试结果列于表 1. DSC 测量结果表明, 随着

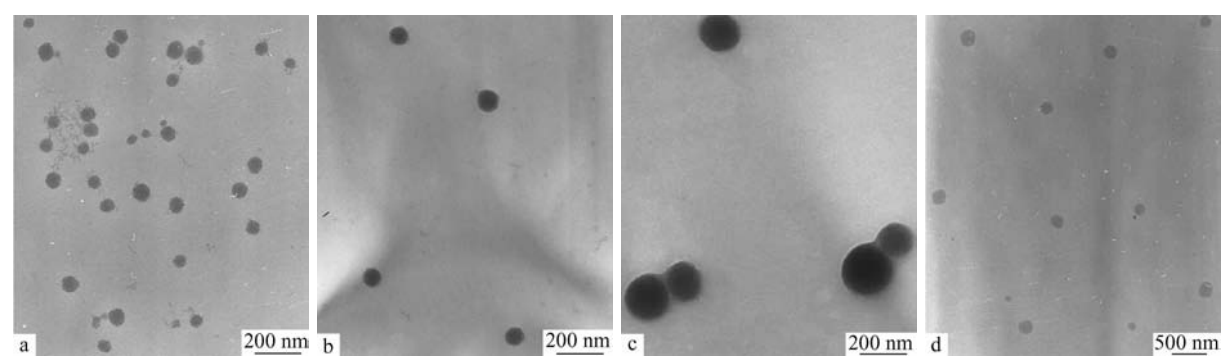


Fig. 1 TEM images of SiO₂ in solutions of different PEI concentrations *via* sol-gel method: (a) 0 g/mL, (b) 0.005 g/mL, (c) 0.015 g/mL and (d) 0.02 g/mL

The concentration of TEOS fixed at 7.4×10^{-3} g/mL

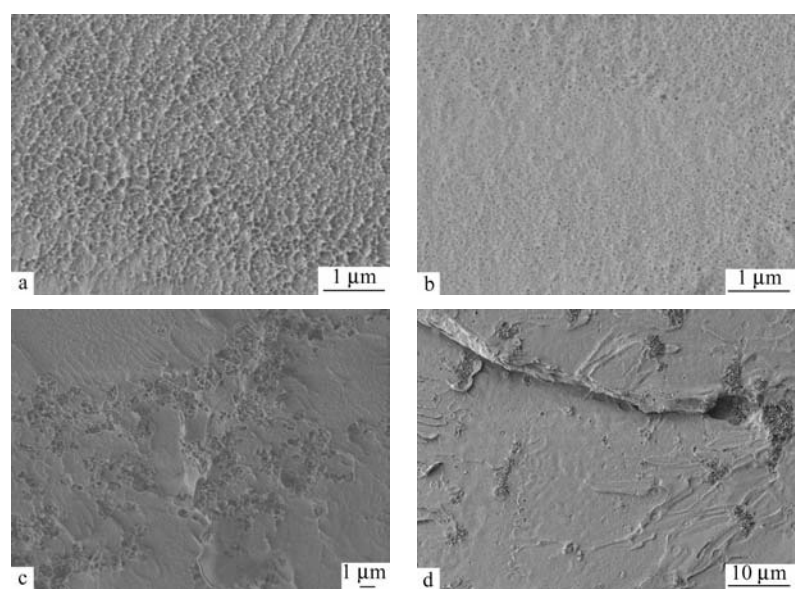


Fig. 2 SEM images of fracture surface of PEI/SiO₂ composites (a) 10 wt%, (b) 20 wt%, (c) 25 wt% and (d) 30 wt% SiO₂ were etched by HF, and the concentration of PEI was fixed at 0.005 g/mL.

Table 1 DSC and TGA results for PEI/SiO₂ composites

PEI system	A	B	C	D	E
SiO ₂ weight fraction (%)	0	7.9	12.5	21.5	30
T_g (°C)	212.8	232.7	235.3	234.3	233.9
T_d^* (°C)	523.6	539.9	556.6	549.9	549.0

* T_d was the temperature of 10% weight loss.

少量 SiO₂ 的引入, PEI 的 T_g 有较大幅度提高; 当含量超过 12.5 wt% 以后, SiO₂ 含量变化对 T_g 的影响将减弱. TGA 测试结果如图 3 所示, 以失重 10% 时的温度为分解温度 T_d , 结果列于表 1 中. 随着 SiO₂ 的引入, 复合物的热分解温度有明显提高, 而当粒子含量为 12.5% 时, T_d 达到最大值 556.6℃; 继续增加粒子含量, T_d 值回落至 549℃ 附近, 并不再随粒子含量的改变而发生明显变化.

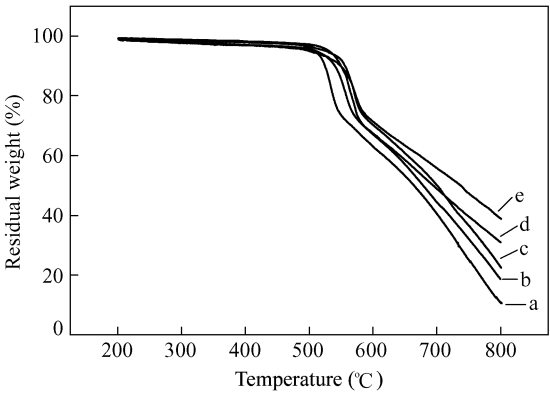


Fig. 3 TGA curves of PEI/SiO₂ composites with different SiO₂ weight fractions: (a) 0; (b) 7.9%; (c) 12.5%; (d) 21.5%; (e) 30%

我们认为,引入粒子后能使 PEI 的玻璃化转变温度和热分解温度都升高,是由于 SiO_2 纳米粒子表面含有大量羟基^[21,22,25],可以和 PEI 分子链中的醚键基团形成一定的氢键作用,起到了物理交联点的效果,束缚了分子链段的运动,从而使得 T_g 和 T_d 得到提高^[26].当粒子浓度超过一定范围后会出现团聚现象,粒子的团聚导致其在基体中比表面积减少,单位质量的粒子上能够与 PEI 发生相互作用的羟基数量也相应减少,此时继续提高粒子浓度对 PEI 分子链段运动的影响不明显.因此在粒子浓度较高时, T_g 和 T_d 值都趋于稳定,不再随粒子含量增加而发生明显改变.

2.3 PEI 及 PEI/ SiO_2 复合材料与环氧树脂复合体系的相分离行为

图 4 显示环氧树脂(ER)/PEI 复合体系固化后的形貌,其中图 4(a)为未经过刻蚀处理的断面,图 4(b)为 HF 酸刻蚀后的断面.通过对比刻蚀前后的形貌可知,在 $w(\text{ER})/w(\text{PEI}) = 100/10$ 的体系中,固化后 PEI 富集相以岛状分散相的形态均匀分布在环氧富集相中.将 PEI/ SiO_2 复合物填充到环氧树脂中,其相分离形貌如图 5 所示.通过与图 4 的对比可得:随着 SiO_2 粒子的引入,PEI 分散相的尺寸明显减小,在没有引入 SiO_2 的 ER/PEI 体系中,如图 4(a)所示,分散相尺寸大于 $1\text{ }\mu\text{m}$;随着 SiO_2 含量的增加,分散相尺寸逐渐减小,当 ER/PEI/ SiO_2 复合体系的质量比为 100/10/1.2 时,如图 5(b)所示,大部分 PEI 分散相粒

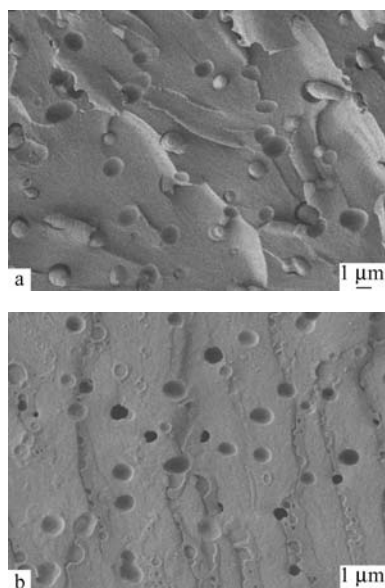


Fig. 4 SEM images of the fracture surface of the epoxy resin (ER)/PEI composite, $w(\text{ER})/w(\text{PEI}) = 100/10$: (a) Unetched and (b) Etched by chloroform

径在 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下,极少部分在 $1\text{ }\mu\text{m}$ 左右.另外,从图 4(a)中可以观察到 PEI 富集相与 ER 富集相之间有清晰的分界面,而图 5(b)中这种相界面则变得模糊,表明粒子的引入使分散相与基体的界面作用得到增强.可以认为,这是由于 SiO_2 表面羟基的存在,加强了与环氧基体的相互作用的结果.

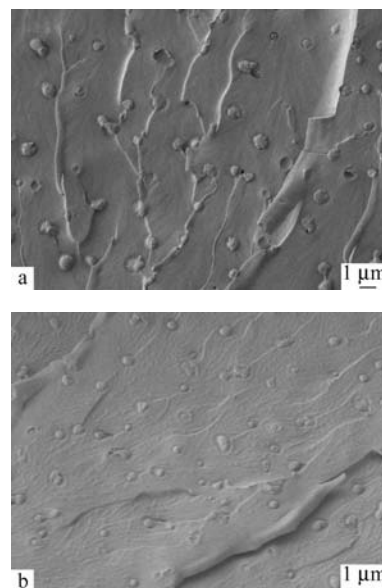


Fig. 5 SEM images of the unetched fracture surface of the ER/PEI/ SiO_2 composite: (a) $w(\text{ER})/w(\text{PEI})/w(\text{SiO}_2) = 100/10/0.7$ and (b) $w(\text{ER})/w(\text{PEI})/w(\text{SiO}_2) = 100/10/1.2$

图 6 为不同粒子含量的改性体系在 120°C 下固化时流变仪所测得的黏度变化曲线.开始固化后,体系黏度随环氧分子量的增加而不断增大;但在固化开始约 $80 \sim 100\text{ min}$ 附近,黏度曲线上有小峰出现,这是因为在 PEI 富集相为分散相的体

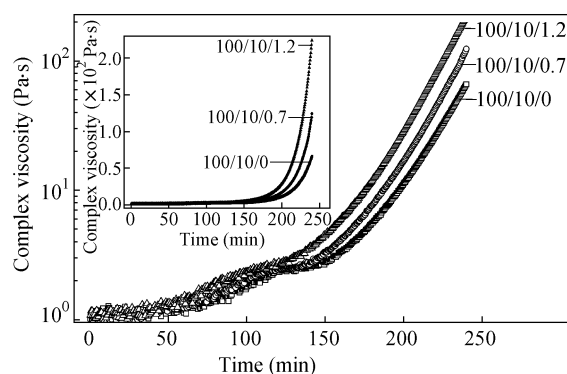


Fig. 6 Influence of SiO_2 particle concentration on the variation of complex viscosity in the modified epoxy systems cured at 120°C

The Y-axis of the inserted graph was changed to linear coordinate.

系中,相分离发生时首先会出现双连续的相结构,导致黏度急剧上升;随后 PEI 富集相彼此联结并收缩,形成 PEI 分散粒子.此时由于高黏度的 PEI 从基体中分离形成分散相粒子,低黏度的环氧富集相成为连续相,导致体系黏度的增长速度在相分离后会出现下降、回归原体系黏度的增长曲线情况.因此环氧改性体系黏度变化的拐点可表示相分离的起始点.从图中可以看出,随着体系中粒子含量的升高,相分离时间略有提前,说明 SiO₂ 纳米粒子的存在促进了固化反应的进行,加速了体系相分离的发生.

图 6 中的插入图是将图 6 的纵坐标变换为线性坐标后的结果.可以清楚的观察到,相分离发生后,随着体系中粒子含量的增加,体系的黏度增长速率略有增大,即粒子含量高的体系固化反应速率较快,将在较短时间内达到较高的黏度.如前所述,这是因为 SiO₂ 纳米粒子对环氧的固化反应有着催化作用^[27,28],促进了反应的进行.此时急剧升高的黏度将阻碍相结构粗化的进行,相结构将被固定下来.因此粒子含量较高的改性体系的相结构粗化过程将被抑制在较早的阶段,所以该体系的 PEI 分散相尺寸比粒子含量低的体系的分散相尺寸小.

2.4 PEI 及 PEI/SiO₂ 复合材料对环氧体系热机械性能的影响

图 7(a)为纯环氧树脂体系和用不同粒子含量的 PEI/SiO₂ 复合材料改性后的体系的储能模量随温度变化的曲线.由图可知,在相同温度下,改性体系的储能模量都高于纯环氧体系的储能模量,且在低温和常温区间,改性体系的模量都随粒子含量的增加而升高.上述体系在常温(25℃)下的储能模量值如表 2 所示,可以明显的观察到该温度下 PEI 及其中粒子的加入对模量的提高作用.图 6(b)为上述体系的损耗模量随温度的变化曲线.由损耗模量峰确定的体系玻璃化转变温度也列在表 2 中,与纯环氧树脂相比,改性体系的

T_g 值略有提高.

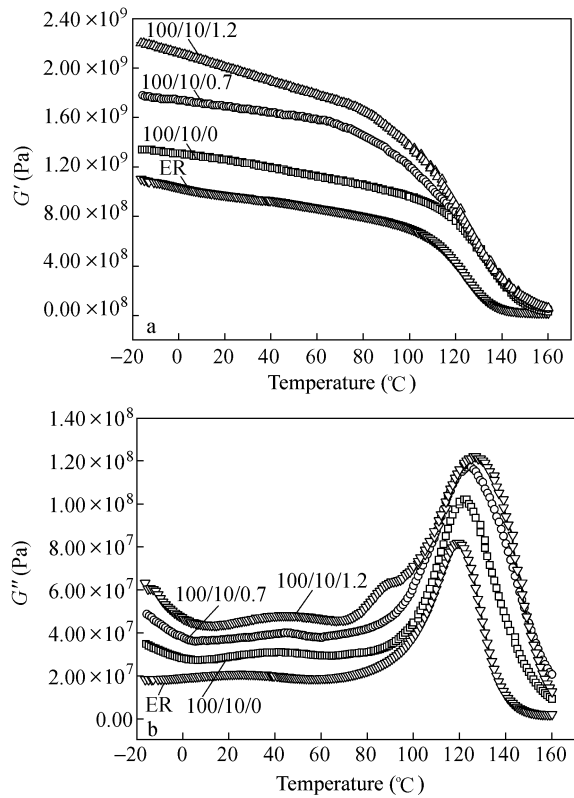


Fig. 7 The influence of PEI and the concentration of SiO₂ particles on the results of DMTA (a) storage modulus and (b) loss modulus

为了研究 PEI、PEI/SiO₂ 对 ER 的增韧作用,分别制备纯 ER、 $w(ER)/w(PEI) = 100/10$ 、 $w(ER)/w(PEI)/w(SiO_2) = 100/10/0.7$ 、 $w(ER)/w(PEI)/w(SiO_2) = 100/10/1.2$ 等 4 种组分的标准冲击样条,进行冲击测试.表 2 中的测试结果表明,PEI、PEI/SiO₂ 的加入极大的提高了体系的冲击强度,起到了明显的增韧作用.

对比纯环氧体系和改性体系的测试结果,可以发现使用 PEI/SiO₂ 改性 ER,体系的冲击强度、玻璃化转变温度以及模量均得到了提高.这表明用 PEI/SiO₂ 改性 ER,同时达到了增加韧性和提高模量的效果.

Table 2 Mechanical properties of cured ER and the modified composites

Sample	ER	$w(ER)/w(PEI)$	$w(ER)/w(PEI)/w(SiO_2)$	$w(ER)/w(PEI)/w(SiO_2)$
		100/10	100/10/0.7	100/10/1.2
Storage modulus at 25℃ (MPa)	959	1240	1680	1970
T_g (℃)	119.5	122.6	124.4	126.7
Impact strength (kJ/m ²)	15.9	22.1	19.4	21.6

3 结论

在 *N,N*-二甲基乙酰胺/四氢呋喃 (DMAc/THF) 混合溶剂中, 通过溶胶-凝胶法原位制备了聚醚酰亚胺 (PEI)/SiO₂ 复合材料. 当 SiO₂ 含量低于 20 wt% 时, 粒子可以均匀分散, 且 SiO₂ 纳米粒

子的引入使 PEI 的玻璃化转变温度 (T_g) 和热分解温度 (T_d) 显著提高. 用 PEI/SiO₂ 复合材料改性环氧树脂, PEI 分散相尺寸明显减小, 环氧复合体系在提高了韧性的同时也达到了模量提高的效果.

REFERENCES

- 1 Vale'ria D, Helson M, Vera L, Regina S. Polym Test, 2005, 24: 387 ~ 394
- 2 Ha S R, Ryu S H, Park S J, Rhee K Y. Mater Sci Eng A, 2007, 448: 264 ~ 268
- 3 Borrajo J, Riccardi C C, Williams R J, Siddiqi H M, Dumon M, Pascault J P. Polymer, 1998, 39: 845 ~ 853
- 4 Witold B, Wunpen C, Kevin P M, Thomas W S. Mater Sci Eng A, 2009, 507: 241 ~ 251
- 5 Takao I, Norio S, Wakichi F, Masao T. Eur Polym J, 1995, 31: 775 ~ 783
- 6 Eamor M W, Hseih H K. Polymer, 1998, 39: 7 ~ 13
- 7 Kim D H, Beak J O, Choe Y S, Kim W H. Korean J Chem Eng, 2005, 22: 755 ~ 761
- 8 Hodgkin J H, Simon G P, Varley R J. Polym Adv Techno, 1998, 9: 3 ~ 10
- 9 Inoue T. Prog Polym Sci, 1995, 20(1): 119 ~ 153
- 10 Kim B S, Chiba T, Inoue T. Polymer, 1995, 36: 43 ~ 47
- 11 Kim B S, Chiba T, Inoue T. Polymer, 1995, 36: 67 ~ 71
- 12 Girard R E, Vicard V, Pascault J P, Sautereau H. J Appl Polym Sci, 1997, 65: 2433 ~ 2445
- 13 Gan W J, Xiong W, Yu Y F, Li S J. J Appl Polym Sci, 2009, 114: 3158 ~ 3167
- 14 Kimoto M, Mizutani K. J Mater Sci, 1997, 32(9): 2479 ~ 2483
- 15 Su C C, Kuo J F, Woo E. J Polym Sci, Part B: Polym Phys, 1995, 33(16): 2235 ~ 2244
- 16 Zhang X J, Yi X S, Xu Y Z. J Appl Polym Sci, 2008, 109: 2195 ~ 2206
- 17 Zhao Shiqi (赵世琦), Yun Huiming (云会明). China Plastics (中国塑料), 1999, 13: 35 ~ 39
- 18 Rosso P, Ye L, Friedrich K, Sprenger S. J Appl Polym Sci, 2006, 100: 1849 ~ 1855
- 19 Federica B, Valeria C, Elena F, Massimo M. J Appl Polym Sci, 2005, 97: 2382 ~ 2386
- 20 Kang S T, Hong S I, Choe C R, Park M, Rim S H, Kim J K. Polymer, 2001, 42: 879 ~ 887
- 21 Gerhard S. Chem Mater, 2001, 13: 3422 ~ 3435
- 22 Larry L H, Jon K W. Chem Rev, 1990, 90: 33 ~ 72
- 23 Wu Chonghao (吴崇浩), Wang Shimin (王世敏), Zhao Lei (赵雷), Xu Zuxun (许祖勋), Li Junbo (黎俊波). Chinese Journal of Colloid & Polymer (胶体与聚合物), 2003, 21: 39 ~ 42
- 24 Feng CaiHong (冯彩虹), Jiao Qingze (矫庆泽), Li Qianshu (李前树), Ming Enze (闵恩泽). Chemical Journal of Chinese Universities (高等学校化学学报), 2004, 25: 1743 ~ 1746
- 25 John J F, Christine J T, John M P. Macromolecules, 1992, 25: 3715 ~ 3722
- 26 LI Yinwen (李因文), Shen Minmin (沈敏敏), Huang Huoyang (黄活阳), Ma Yijing (马一静), Ha Chengyong (哈成勇). Acta Polymerica Sinica (高分子学报), 2009, (11): 1086 ~ 1090
- 27 Liu Y L, Li S H. J Appl Polym Sci, 2005, 95: 1237 ~ 1245
- 28 Ragosta G, Abbate M, Musto P, Scarinzi G, Masci L. Polymer, 2005, 46: 10506 ~ 10516

***in situ* PREPARATION OF PEI/SiO₂ COMPOSITES AND THEIR MODIFICATION FOR EPOXY RESIN**

ZHANG Jing, SHI Weichao, XIE Xuming

(Laboratory of Advanced Materials Institute of Polymer Science and Engineering,
Department of Chemical Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084)

Abstract Polyetherimide (PEI)/SiO₂ composites were *in situ* prepared *via* sol-gel process in the presence of tetraethyl orthosilicate (TEOS) in a mixed solvent of *N,N*-Dimethylacetamide/tetrahydrofuran (DMAc/THF). Electronic microscopy was used to check dispersion quality in transmission mode and scanning mode, and the results showed that SiO₂ particles could be uniformly dispersed in the composite under a certain amount (20 wt%) and the average size of the particles could be controlled within a compass of 80 ~ 300 nm. However,glomeration may occur if the concentration of SiO₂ particles was beyond this range. Results of Differential scanning calorimetry (DSC) and thermogravimetric analysis (TGA) showed that the glass transition temperature (T_g) and decomposition temperature (T_d) of PEI were improved by introducing SiO₂ particles. The phase separation morphology of blends of 4,4'-diaminodiphenyl sulphone cured epoxy with PEI or PEI/SiO₂ composite was investigated by SEM and it showed that the introduction of SiO₂ particles could reduce the size of the dispersion phase (PEI rich phase). Dynamic rheological measurement of epoxyresin (ER)/PEI/silica blends with different silica particle content was conducted at same isothermal temperature. The onset time of phase separation decreased as silica particles in the blend system increased because the silica particles could act as catalyst in the polymerization reaction and make the phase separation easier to occur. After that, the viscosity of system with higher particle concentration grew faster and made the phase separation process ends in an earlier stage. Dynamic mechanical thermal analysis (DMTA) and impact tests showed that using PEI/SiO₂ as the modifier could enhance the modulus and toughness property of the epoxy resin system simultaneously.

Keywords Sol-gel, PEI, Composite, Epoxy resin