

## 불소함유 에폭시 수지의 열적, 기계적 및 전기적 특성

박수진<sup>†</sup> · 김범용 · 이재락 · 신재섭\*

한국화학연구원 화학소재연구부, \*충북대학교 화학과  
(2002년 12월 28일 접수, 2003년 3월 26일 채택)

## Thermal, Mechanical, and Electrical Properties of Fluorine-Containing Epoxy Resins

Soo-Jin Park<sup>†</sup>, Fan-Long Jin, Jae-Rock Lee, and Jae-Sup Shin\*

Advanced Materials Division, Korea Research Institute of Chemical Technology,

P.O. BOX 107, Yusong, Daejon 305-600, Korea

\*Department of Chemistry, Chungbuk National University,

Chongju, Chungbuk 361-763, Korea

<sup>†</sup>e-mail : psjin@kRICT.re.kr

(Received December 28, 2002; accepted March 26, 2003)

**초록 :** 유전체 분광계를 사용하여 불소함유 에폭시 수지, 벤조트리플루오라이드의 다이글리시딜 에테르 (FER)/다이아미노다이페닐메탄 (DDM)과 비스페놀 A의 다이글리시딜 에테르 (DGEBA)/DDM 시스템의 유전 상수를 측정하였으며, DMA와 TGA에 의한 열분석을 통하여 유리 전이 온도 및 열분해 개시온도, 최대 무게 감량시 온도, 그리고 분해 활성화 에너지 등 열안정성 인자를 고찰하였다. 경화된 시편의 기계적 물성은 파괴 인성, 굴곡강도 및 충격강도 실험을 통하여 알아보았으며, 주사전자 현미경을 사용하여 시편의 파단 특성을 조사하였다. 실험 결과, DGEBA/DDM 시스템에 비해 FER/DDM 시스템은 낮은 유전 상수를 나타내었으며, 경화된 시편의 기계적 물성은 높은 값을 나타내었다. 이는 trifluoromethyl ( $CF_3$ ) 기의 도입으로 인하여 전기적 특성과 기계적 물성이 증가한 것으로 사료된다.

**ABSTRACT :** The dielectric constants of fluorine-containing epoxy resins, 2-diglycidylether of benzotri-fluoride(FER)/4,4'-diamino-diphenyl methane (DDM) and diglycidylether of bisphenol-A (DGEBA)/ DDM systems were evaluated by dielectric spectrometer. Glass transition temperature and thermal stability factors, including initial decomposed temperature, temperatures of maximum rate of degradation, and decomposition activation energy of the cured specimens were investigated by dynamic mechanical analysis and thermogravimetric analysis. For the mechanical properties of the casting specimens, the fracture toughness, flexural, and impact tests were performed, and their fractured surfaces were examined by scanning electron microscope. The dielectric constant of FER/DDM system was lower than that of commercial DGEBA/DDM system, and the mechanical properties of the cured specimens showed higher values than those of DGEBA/DDM system. This was probably due to the introduction of trifluoromethyl ( $CF_3$ ) group into the side chain of the epoxy resins, resulting in improving the electric and mechanical properties of the epoxy cure system studied.

**Keywords :** fluorine-containing epoxy resins, electrical properties, critical stress intensity factor, activation energy, dielectric constant.

### 1. 서론

불소함유 고분자는 1938년 du Pont사의 Jackson 실험실에서 처음으로 발견된 이후 독특한 특성으로 인하여

많은 연구자들의 관심을 끌게 되었으며, 또한 다양한 종류의 불소함유 고분자들이 개발되어 광통신, 전자재료, 우주항공 등에 널리 사용되고 있다.<sup>1,2</sup>

고분자의 주체 또는 측쇄에 불소, 주로 trifluoromethyl

( $\text{CF}_3$ ) 기를 도입하면 견고한 C-F 결합으로 인하여 유전 상수의 감소와 흡수율의 저하효과를 얻을 수 있으며 열 안정성과 용매에 대한 저항을 향상시킬 수 있으며, 우수한 기계적 물성, 표면 및 광학 특성을 얻을 수 있다.<sup>3</sup> 따라서  $\text{CF}_3$  기를 함유한 고분자의 합성을 통하여 물성을 향상하는 연구가 많이 진행되고 있다. 주쇄에  $\text{CF}_3$  기를 도입한 acrylic monomer는 UV 경화시의 반응성을 저하시키지 않고 유리 전이 온도를 향상시켰으며,<sup>4</sup>  $\text{CF}_3$  기를 함유한 dimethacrylate는 우수한 내습성과 기계적 물성을 나타내었으며,<sup>5</sup>  $\text{CF}_3$  기를 도입한 poly(imide amide), polyether azomethine, bisphenol AF 등은 우수한 열안정성, 높은 유리 전이 온도 및 인장강도를 나타내었으며,<sup>6-8</sup>  $\text{CF}_3$  기를 함유한 polybenzothiazole과 측쇄에  $\text{CF}_3$  기를 도입한 폴리이미드는 높은 유리 전이 온도와 우수한 열안정성 및 기계적 물성을 나타내었다.<sup>9-11</sup> 그리고  $\text{CF}_3$  기를 함유한 에폭시 수지는 우수한 내화학성, 열안정성, 기계적 물성을 나타내었다.<sup>12</sup>

따라서, 본 연구에서는 아민계 경화제인 4,4'-diaminodiphenol methane (DDM)에 의한  $\text{CF}_3$  기를 함유한 에폭시 수지, 벤조트리플루오라이드의 다이글리시딜 에테르 (FER)/DDM 시스템과 범용 수지인 비스페놀 A의 다이글리시딜 에테르를 경화제 DDM를 가지고 경화시킨 DGEBA/DDM 시스템의 열안정성, 기계적 물성, 그리고 유전 상수 등을 상호 비교·고찰하고자 하였다.

## 2. 실험

**재료.** 이관능성 에폭시 수지는 국도화학의 비스페놀 A의 다이글리시딜 에테르 (DGEBA, YD-128, EEW=185~190 g/eq,  $d=1.16 \text{ g/cm}^3$ )를 사용하였으며, 경화제 DDM은 Aldrich사의 시약을 사용하였으며, 벤조트리플루오라이드의 다이글리시딜 에테르 에폭시 수지는 다음과 같이 합성하였다.

2-Chlorobenzotrifluoride (27.1 g, 0.15 mol), glycerol diglycidyl ether (30.6 g, 0.15 mol), pyridine (0.28 g) 및 hydroquinone (0.12 g)을 온도계와 교반기가 달린 500 mL 반응기에 넣고 30 °C까지 가열한 다음 질소 분위기 하에서 24시간 교반하여 반응시켰다. 생성물을 여과한 후 100 °C, 진공에서 증류하여 수율 80% 이상의 불소 함유 에폭시 수지 (FER)를 얻었다. 합성된 수지의 화학구조를 FT-IR,  $^{13}\text{C}$  NMR, 그리고  $^{19}\text{F}$  NMR를 통하여 확인하였으며, 본 연구에 사용된 단량체와 경화제 DDM의 화학 구조식을 Figure 1에 나타내었다.

FT-IR (KBr) :  $\nu = 851, 910 \text{ cm}^{-1}$  (에폭시기의 C-O-C),  $1256 \text{ cm}^{-1}$  (에폭시기의 C-C),  $1105 \text{ cm}^{-1}$  (- $\text{CF}_3$ ),  $1612 \text{ cm}^{-1}$

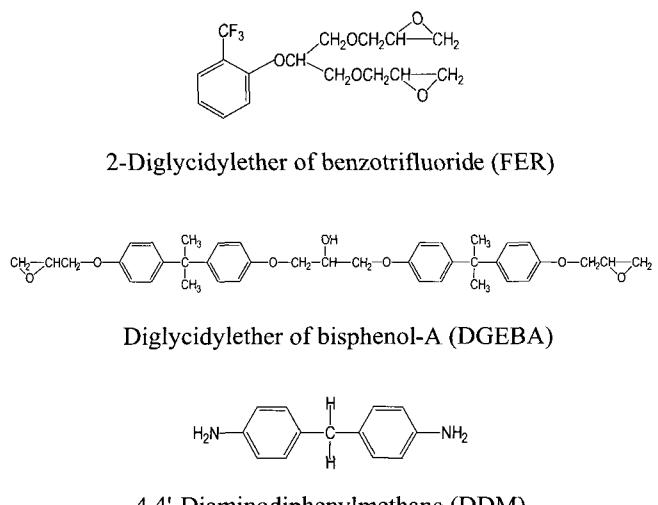


Figure 1. Chemical structures of the materials.

(방향족의 C=C),  $3058 \text{ cm}^{-1}$  (방향족의 C-H).

$^{13}\text{C}$  NMR spectrum :  $\delta = 43.3 \text{ ppm}$  (에폭시기의 CH<sub>2</sub>),  $50.5 \text{ ppm}$  (에폭시기의 CH),  $70.6 \text{ ppm}$  (에폭시기의 OCH<sub>2</sub>),  $78.4 \text{ ppm}$  (-CHO-),  $127.7 \text{ ppm}$  (- $\text{CF}_3$ ),  $127.5, 131.6, 133.9 \text{ ppm}$  (벤젠 환).

$^{19}\text{F}$  NMR spectrum:  $\delta = -61.95 \text{ ppm}$  (- $\text{CF}_3$ ).

**시편 제조.** 점도를 저하시킨 에폭시 수지 (FER 또는 DGEBA)를 완전히 녹인 후 80 °C의 온도에서 당량 비율 1:1로 DDM 경화제와 혼합하여 투명한 혼합물이 얻어질 때까지 교반시킨 후 진공 오븐에서 감압하여 기포 등을 탈기시켰다. 혼합한 시료를 실리콘 고무를 간격판으로 한 스테인레스 몰드에 주입한 후 대류오븐에서 경화를 시켰다. 경화조건은 100 °C 2시간, 120 °C 2시간, 그리고 140 °C 2시간의 3단계의 경화 사이클을 적용하였다.

**동적 점탄성.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 동적 점탄성 측정은  $12 \times 35 \times 2 \text{ mm}^3$  크기로 시편을 가지고 Rheometrics사의 RDS-II를 사용하여 온도 범위 30~250 °C, 승온 속도 5 °C/min, 그리고 주파수는 1 Hz 하에서 온도에 따른 저장탄성률과 tanδ를 측정하였다.

**TGA 열분석.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 열분해 개시온도 (IDT), 최대 무게 감량시 온도 ( $T_{\max}$ ) 등의 열안정성 인자를 고찰하기 위하여 열중량 분석기 (du Pont, TGA-2950)를 사용하여 10 °C/min의 승온속도와 질소분위기 하에서 30~850 °C 온도 범위에서 시편의 열안정성을 측정하였다.

**전기적 특성.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 전기적 특성은  $\phi 20 \times 2 \text{ mm}^2$  크기로 시편을 제작하였으며, 유전체 분광계 (Novocontrol GmbH, Model : CONCEPT

40)를 사용하여 상온에서 주파수 범위 1~10 GHz 하에서 유전 상수를 측정하였다.

**기계적 특성 및 주사전자 현미경 관찰.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 임계응력 세기인자 ( $K_{IC}$ )는 만능 재료 시험기 (Universal Testing Machine #1125, Lloyd LR 5K)를 사용하여 cross-head speed를 1 mm/min, span-to-depth는 4:1로 하는 삼점굽힘시험 방법으로 측정하였다. Single edge notched bending (SENB) 시편은 ASTM E399에 의거하여 노치의 깊이를 두께의 1/2로 고정하여 제작하였으며, 5개의 시편을 측정하여 평균값을 사용하였다. FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 굴곡강도와 굴곡 탄성률은 Universal Testing Machine #1125를 사용하여 ASTM D790에 준해 시편을 제작하였으며, span-to-depth는 16:1로, cross-head speed는 2.6 mm/min로 하는 삼점굽힘 시험 방법으로 측정하였다. FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 충격강도는  $5 \times 10 \times 80$  mm<sup>3</sup>의 크기로 시편을 제작하였으며, low-velocity falling weight impact tester를 사용하여 낙하거리를 1 m, 추 무게를 50 N로 고정하여 측정하였다. 파괴 인성 측정 후 주사전자 현미경 (scanning electron microscope, SEM)을 사용하여 500배로 파단면의 모폴로지 또는 형태학적 특성을 관찰하였다.

### 3. 결과 및 토론

**동적 점탄성.** 동적 열기계 분석법 (DMA)은 온도의 함수로써 저장탄성률 ( $E'$ )과 손실탄성률 ( $E''$ )을 검출하는 방법이다. 또한, DMA 분석은 고분자 재료의 유리전이 및 응력완화를 고찰하는데 아주 유용한 방법으로 사용되고 있다.<sup>13</sup> DMA 분석을 통하여 얻어진 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의  $E'$ 과  $\tan\delta$  대 온도와의 관계를 Figure 2와 3에 나타내었다.  $\tan\delta$  곡선의 최고점에서 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 유리 전이 온도 ( $T_g$ )를 측정한 결과 각각 193.7 °C과 105.7 °C로서 FER/DDM 시스템이 낮은  $T_g$  값을 나타내었는데, 이는 수지 내의 중복 단위 및 벤젠 환 개수의 감소로 인한 것으로 사료된다.<sup>14</sup> Figure 3에서 알 수 있듯이 상온에서 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의  $E'$ 은 각각 2249, 1910 MPa이었다. 또한, DGEBA/DDM 시스템은 180 °C까지 안정한  $E'$ 을 나타내었으나, FER/DDM 시스템의 저장계수는 DGEBA/DDM 시스템보다 조금 높은 점에서 시작되어 온도의 증가에 따라 점차 감소하기 시작하였으며, 100 °C 부근에서 급격한 감소를 나타내었다. 이는 불소함유 에폭시 수지의 구조로 인하여 시스템의 열안정성이 저하된 것으로 사료된다.<sup>15</sup>

**TGA에 의한 열분석.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시

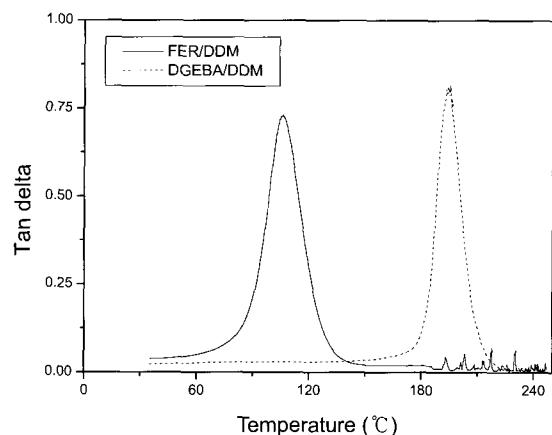


Figure 2. The  $\tan\delta$  FER/DDM of and DGEBA/DDM systems as a function of temperature.

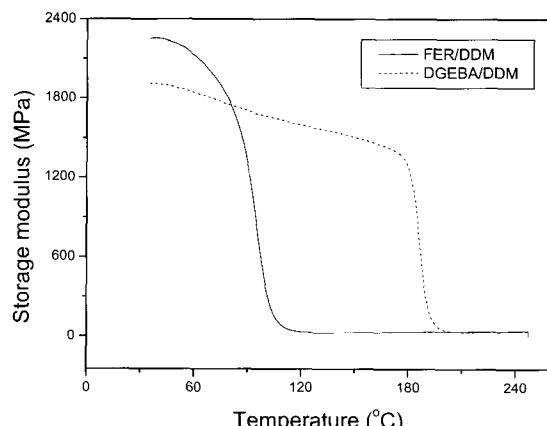
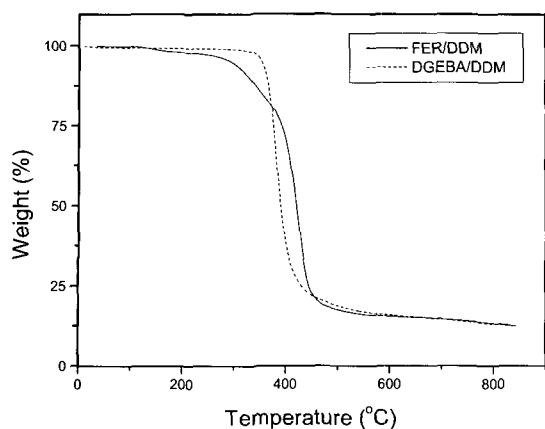


Figure 3. Storage modulus of FER/DDM and DGEBA/DDM systems as a function of temperature.

스템의 열분해 온도에 따른 중량감소를 고찰하기 위하여 TGA 열분석을 시행하였으며, TGA 열분석도로부터 열분해 개시온도 (IDT), 최대 무게 감량시 온도 ( $T_{max}$ ) 등의 열안정성 인자를 구하였다.<sup>16</sup> Figure 4에 나타낸 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 TGA 열분석도로부터 얻어진 열안정성 인자값들을 Table 1에 나타내었다. FER/DDM 시스템은 DGEBA/DDM에 비해 낮은 온도에서 열분해가 개시되었으나, 중량감소가 20% 이후부터는 더 높은 온도에서 분해가 진행됨을 알 수 있었다.

분해 활성화 에너지는 열분해에 대한 유용한 정보를 제공함과 동시에 열안정성에 대한 중요한 인자로 작용한다. Figure 4의 열분석도로부터 시편의 중량 ( $W$ )과 분해 온도 ( $T$ )를 구할 수 있으며, Broido의 적분식 (3)을 이용하여 열분해 활성화 에너지 ( $E_a$ )를 구할 수 있다.<sup>17</sup>



**Figure 4.** TGA thermograms of FER/DDM and DGEBA/DDM systems.

**Table 1. Thermal Stability Parameters of Cured FER/ DDM and DGEBA/ DDM Systems**

System	$T_g$ (°C)	IDT (°C)	$T_{max}$ (°C)	$E_t$ (kJ/mol)
FER/DDM	105	296	424	106
DGEBA/DDM	193	354	383	132

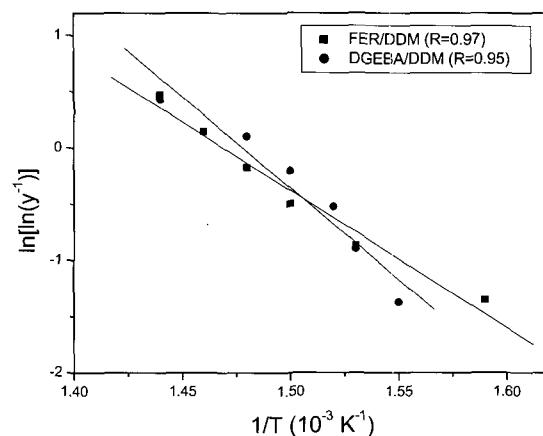
$$\ln[\ln(y^{-1})] = -\frac{E_t}{RT} + C \quad (3)$$

$$y = \frac{(W - W_\infty)}{(W_0 - W_\infty)} \quad (4)$$

여기서,  $W$ 는 온도  $T$ 에서의 시편의 중량,  $W_0$ 는 열분해 개시시 시편의 중량,  $W_\infty$ 는 시편의 최종 중량,  $T$ 는 열분해 온도,  $C$ 는 실온상수, 그리고  $R$ 은 기체상수를 각각 나타낸다.

Broido의 적분식 (3)을 이용하여 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 TGA 열분석도로부터 구한  $\ln[\ln(y^{-1})]$  vs.  $1/T$ 의 관계를 Figure 5에 도시하였으며, 이 그래프의 기울기로부터  $E_t$ 를 구하여 Table 2에 나타내었다. Table 1과 Table 2에서 알 수 있듯이 FER/DDM 시스템의 IDT,  $T_{max}$ ,  $E_t$  등 열안정성 인자는 DGEBA/DDM 시스템에 비해 낮은 값을 나타내었는데, 이는 앞에서 서술한 불소함유 에폭시 수지내의 중복 단위 및 벤젠환 개수의 감소로 인하여 열안정성이 저하되었기 때문이라 판찰된다.<sup>14,15</sup>

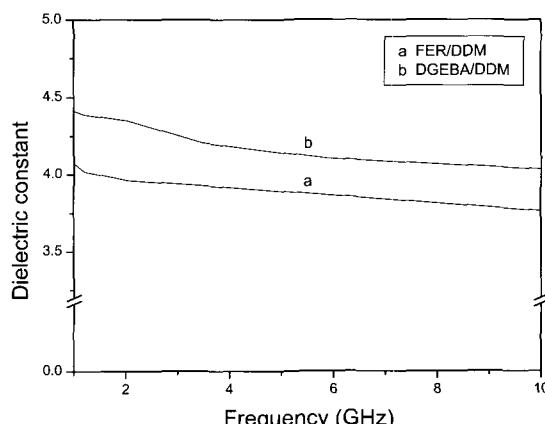
**전기적 특성.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 전기적 특성을 고찰하기 위하여 주파수 범위 1~10 GHz 하에서 유전상수를 측정하였다. Figure 6에서 시스템의 유전상수는 모두 주파수의 증가에 따라 약간의



**Figure 5.** Plots of  $\ln[\ln(y^{-1})]$  vs.  $1/T$  for FER/DDM and DGEBA/DDM systems.

**Table 2. Mechanical Properties of FER/DDM and DGEBA/ DDM Systems**

system	$K_{IC}$ (MPa·m <sup>1/2</sup> )	$\sigma_f$ (MPa)	$E_b$ (GPa)	impact strength (kN/m <sup>2</sup> )
FER/DDM	5.63	118.5	4.08	49.9
DGEBA/DDM	3.53	113.5	2.94	26.0



**Figure 6.** Dielectric constant of FER/DDM and DGEBA/DDM systems as a function of frequency.

감소를 나타내었으며, FER/DDM 시스템의 유전상수는 3.98~3.75, DGEBA/DDM 시스템의 유전상수는 4.40~4.02를 나타내었다. 이처럼 FER/DDM 시스템이 보다 낮은 유전상수를 나타내었는데, 이는 FER의 측쇄에 불소 원자의 도입에 의한 polarization의 야기로 인하여 시스템의 유전상수가 낮아진 것으로 사료된다.<sup>18,19</sup>

**기계적 특성 및 주사전자 현미경 관찰.** FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 기계적 물성은 파괴 인성, 굴곡 강도 및 충격강도 실험을 통하여 고찰하였다. 파괴 인성

특성은 삼점굴곡실험을 통하여 알아보았으며, 경화된 시편의 크랙성장 저항을 나타내는 임계응력 세기인자 ( $K_{IC}$ )는 다음 식 (5)을 사용하여 구하였다.<sup>20</sup>

$$K_{IC} = \frac{P \cdot L}{b \cdot d^{3/2}} \cdot Y \quad (5)$$

여기서,  $P$ 는 하중,  $L$ 는 span간의 거리,  $b$ 는 시편의 너비,  $d$ 는 시편의 두께, 그리고  $Y$ 는 크랙의 길이, 크랙의 위치, 하중 방법에 의존하는 geometric factor를 각각 나타낸다.

FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 굴곡 특성은 삼점굽힘시험을 통하여 알아보았으며, 굴곡강도 ( $\sigma_f$ )와 굴곡탄성률 ( $E_b$ )은 다음 식 (6)과 (7)을 사용하여 구하였다.<sup>21</sup>

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2bd^2} \quad (6)$$

$$E_b = \frac{L^3}{4bd^3} \cdot \frac{\Delta P}{\Delta m} \quad (7)$$

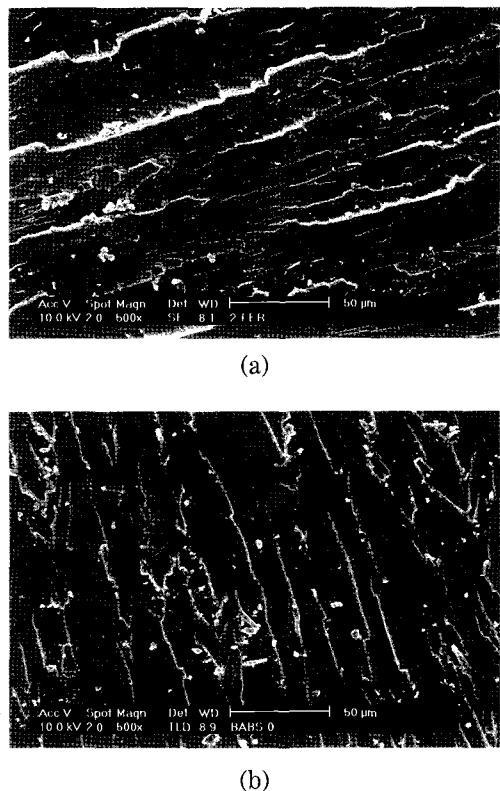
여기서,  $P$ 는 하중,  $L$ 는 span간의 거리,  $b$ 는 시편의 넓이,  $d$ 는 시편의 두께,  $\Delta P$ 는 하중-변형률 곡선의 선형 부분에서의 하중의 변화, 그리고  $\Delta m$ 는 하중에 따른 변형률의 변화를 각각 나타낸다.

식 (5)~(7)을 사용하여 구한 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의  $K_{IC}$ ,  $\sigma_f$ ,  $E_b$  및 충격강도를 Table 2에 나타내었다. 결과에서 알 수 있듯이 FER/DDM 시스템의 기계적 물성은 DGEBA/DDM에 비해 높은 값을 나타내었는데, 이는  $CF_3$  기의 도입으로 치밀한 네트워크 구조로 형성하여 시스템의 기계적 특성이 증가한 것으로 사료된다.<sup>22</sup>

FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 파괴인성 시험 후 주사전자 현미경 (SEM)을 사용하여 시편의 파단 특성을 조사하였으며, 생성된 파단면의 모폴로지를 Figure 7에 나타내었다. FER/DDM의 경우에는 크랙 성장이 자연되어 완곡한 크랙과 능선을 나타내었으며 (Figure 7(a)), DGEBA/DDM의 경우에는 불규칙적인 크랙 형태를 나타내었다 (Figure 7(b)). 이는 파괴 인성 실험에서 얻은 결과와 일치함을 알 수 있었다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 DDM을 경화제로 사용하여 DMA와 TGA에 의한 분석, 유전상수 측정, 그리고 파괴 인성, 굴곡강



**Figure 7.** SEM photographs of fracture surfaces of FER/DDM and DGEBA/DDM systems after  $K_{IC}$  test. (a) FER/DDM and (b) DGEBA/DDM.

도, 충격강도 실험을 통하여 FER/DDM과 DGEBA/DDM 시스템의 열안정성, 전기적 및 기계적 특성을 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수가 있었다.

1) TGA 분석 결과, FER/DDM 시스템의 유리 전이 온도 ( $T_g$ ), 열분해 개시온도 (IDT), 그리고 분해 활성화 에너지 ( $E_a$ ) 등 열안정성 인자는 DGEBA/DDM에 비해 낮은 값을 나타내었다.

2) 전기적 특성 고찰 결과, FER/DDM 시스템의 유전상수는 DGEBA/DDM에 비해 낮은 값을 나타내었다.

3) FER/DDM 시스템의 기계적 물성은 DGEBA/DDM 시스템에 비해 높은 값을 나타냈는데, 이는  $CF_3$  기의 도입으로 치밀한 네트워크 구조를 형성하여 기계적 물성이 증가한 것으로 사료된다.

**감사의 글 :** 본 연구는 2001년도 21C 프론티어 연구개발 사업비에 의하여 수행되었으며 이에 감사드립니다.

#### References

1. E. S. Wilks, "Industrial Polymers Handbook: Products, Pro-

- cesses, Applications”, Wiley-VCH, New York, 2001.
2. T. Endo, “Development and Applications of New Reactive Monomers”, CMC, Tokyo, 1993.
  3. P. E. Cassidy, T. M. Aminabhavi, and J. M. Farley, *J. Macromol. Sci., Rev. Macromol. Chem. Phys.*, **C29**, 365 (1989).
  4. R. Bongiovanni, G. Malucelli, M. Messori, F. Pilati, A. Priola, C. Tonelli, and M. Toselli, *J. Appl. Polym. Sci.*, **75**, 651 (2000).
  5. J. W. Stansbury and J. M. Antonucci, *Dent. Mater.*, **15**, 166 (1999)
  6. E. Hamciuc, C. Hamciuc, I. Sava, M. Sava, and M. Bruma, *Macromol. Mater. Eng.*, **283**, 36 (2000).
  7. P. K. Gutch, S. Banerjee, D. C. Gupta, and D. K. Jaiswal, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **39**, 383 (2001).
  8. Y. Saegusa and T. Sakai, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **38**, 1873 (2000).
  9. Y. Saegusa, M. Horikiri, D. Sakai, and S. Nakamura, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **36**, 429 (1998).
  10. K. Xie, S. Y. Zhang, J. G. Liu, M. H. He, and S. Y. Yang, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **39**, 2581 (2001).
  11. J. G. Liu, M. H. He, Z. X. Li, Z. G. Qian, F. S. Wang, and S. Y. Yang, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **40**, 1572 (2002).
  12. R. Bongiovanni, G. Malucelli, A. Pollicino, and A. Priola, *J. Appl. Polym. Sci.*, **63**, 979 (1997).
  13. S. Rimdusit and H. Ishida, *J. Polym. Sci., Part B: Polym. Phys.*, **38**, 1687 (2000).
  14. S. J. Park and H. C. Kim, *J. Polym. Sci., Part B: Polym. Phys.*, **39**, 121 (2001).
  15. D. J. Diaw, *J. Appl. Polym. Sci.*, **66**, 1251 (1997).
  16. C. D. Doyle, *Anal. Chem.*, **33**, 77 (1961).
  17. A. Broido, *J. Polym. Sci. Part A-2*, **7**, 1761 (1969).
  18. R. H. Vora, P. S. G. Krishnan, S. H. Goh, and T. S. Chung, *Adv. Funct. Mater.*, **5**, 361 (2001).
  19. C. H. Lin, Z. R. Jiang, and C. S. Wang, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **40**, 4084 (2002).
  20. S. J. Park, D. I. Seo, and C. W. Nah, *J. Colloid Interface Sci.*, **251**, 225 (2002).
  21. S. J. Park, M. K. Seo, T. J. Ma, and D. R. Lee, *J. Colloid Interface Sci.*, **252**, 249 (2002).
  22. S. J. Park, M. K. Seo, J. R. Lee, and D. R. Lee, *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **39**, 187 (2001).