

## Nano Clay를 이용한 난연성 Polyolefin Compound의 제조 및 특성에 관한 연구

강두환<sup>†</sup> · 허 준

고차구조형 유기산업재료 연구센터, 단국대학교 고분자공학과  
(2003년 3월 13일 접수 ; 2003년 6월 9일 채택)

### Preparation and Properties of Fireproofing Polyolefin Compound Using Nano Clay

Doo-Whan Kang<sup>†</sup> · June Huh

*Hyperstructured Organic Materials Research Center,  
Department of Polymer Science & Engineering, Dankook University,  
Seoul 140-714, Korea*

<sup>†</sup>*e-mail : kdoowh@dankook.ac.kr*

*(Received March 13, 2003 ; Accepted June 9, 2003)*

**Abstract** : Fireproofing polyolefin nanocomposite for the application of power distributing panel was prepared by compounding linear low density polyethylene(LLDPE), decabromodiphenyl oxide (DBDPO),  $Sb_2O_3$  as flame retardant agents, and modified nano clay as filler. The optimized formulation ratio of compounds to prepare the fireproofing polyolefin nanocomposite was obtained. The flame retardant properties for nanocomposite prepared by compounding 22.5 phr of nano clay and 18 phr of DBDPO based on 100 phr of LLDPE were shown that the combustion time, 10~18 s, combustion distance, 12~15 mm and non-melt dropping characteristics. In particular, the content of DBDPO in nanocomposite could be decreased to 18 phr from 40 phr DBDPO for fireproofing composite containing 30 phr of clay. The electrical properties measured from tracking test, had an excellent antitracking properties by not showing the phenomenon of leakage current and sparking.

**Keywords** : *fireproofing polyolefin, nanocomposite, decabromodiphenyl oxide, antitracking.*

### 1. 서 론

최근 들어 산업의 급속한 발전에 따른 전력수요의 증가로 인하여 전력계통의 고전압화 및 대용량화가 요구되고 있으며 이에 따른 우수한 절연재료의 개발이 이루어져야 할 필요성이 증대

되고 있는 가운데, 전기적 성질이 우수하고 다양한 고분자 하우징(polymer housing) 소재가 케이블, 전선피복, 절연카바 및 절연용 애자 등의 용도로 광범위하게 응용되어 사용되고 있다 [1]. 그러나 이들 고분자 재료의 가장 큰 antitracking 단점중의 하나인 불에 연소가 쉽게

된다는 문제점으로 인하여 그 사용이 제한되고 있는 실정이다. 고분자의 난연화 방법에는 고분자 자체만의 내열성을 높여주거나, 필러의 첨가에 의한 가연성 고분자의 비율을 낮게 제조해주는 방법 적절한 난연제의 첨가 그리고 난연성 재료와의 복합구조화에 의한 가연성 고분자를 보호하는 방법 등이 있다[2,3]. 난연제는 일반적으로 사용법에 따라 첨가형, 반응형 및 조합형 난연제로 나뉘며 반응형 난연제는 난연성분이 플라스틱에 화학적으로 결합되어 외부조건과 관계없이 부루밍(blooming)현상이 없이 난연성이 지속되는데 주로 열경화형 플라스틱에 응용된다. 이에 반해 첨가형 난연제는 플라스틱에 물리적으로 분산되어 있으며, 주로 열가소성 플라스틱에 사용되고 부루밍 현상이 관찰된다. 조합형 난연제의 경우 조합 형태에 따라 난연 상승 효과 또는 저해 효과를 나타낸다. 그러나 난연 상승 효과가 나타날 경우 생산의 원가절감 및 여러 가지 물질들이 향상되므로 가장 유용한 방법이 된다[3-5]. 국내에서 가장 많이 사용되는 할로젠 난연제는 주로 염소나 브롬계 난연제이다. 이들 중 특히 브롬계 난연제가 환경과 피나 인체에의 유해성으로 그 사용을 제한하기 위한 시도가 되고 있다. 이러한 문제점으로 인하여 최근에는 유기화 처리된 nano clay를 사용하여 할로젠 난연제의 양을 줄이거나 비 할로젠의 난연제를 사용하여 난연성을 높이는 연구가 진행되고 있다. 고분자/클레이(clay) nanocomposite는 유기물인 고분자에 무기물인 클레이(clay)가 미세하게 분산되어 있기 때문에 고분자의 기계적 강도[6,7,8], 난연성[9,10], 내마모성 및 내열성 등의 향상과 고분자에 충전제 첨가시에 나타나는 충격강도, 인장성, 투명도의 저하와 고점도화 등의 문제점을 개선할 수 있는 장점을 갖고 있다. 따라서 본 연구에서는 범용플라스틱 중 열가소성수지의 하나인 폴리올레핀계 수지인 LLDPE에 몬모릴로나이트(montmorillonite, MMT) 무기 filler 및 난연제를 배합하여 nanocomposite를 제조하고, 이를 옥외용 배전용 절연카바로 응용하기 위하여 flame retardancy 측정, UTM, SEM 및 내트래킹 시험 등 다양한 기기분석을 통하여 기계적 특성, 난연 및 전기적 특성을 측정하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 재료

폴리올레핀 수지인 LLDPE(linear low density polyethylene ; MI 1.0 g/min, m.p 130~160 °C, 밀도 0.92)는 한화석유화학(주)의 LLDPE 3120을 그대로 사용하였고, 난연제인 DBDPO(decabromodiphenyl oxide)는 Albemarle사제 Saytex 102E 및 Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 Gredmann사제 FM-F, chlorinated paraffin은 염소화 함량이 46% 인 중국산제품을 그대로 사용하였으며, 첨가제로 talc는 서부홍업(주)사제 S325를, nano clay는 미국 Southern Clay Product사의 Cloisite-25A(dimethyl hydrogenated tallow 2-ethylhexyl ammonium, MMT-25A)를 각각 사용하였다.

### 2.2. 폴리올레핀 난연컴파운드의 제조 및 시편 제작

폴리올레핀 난연컴파운드를 제조하기 위한 각 화합물들의 배합비를 Table 1에 나타내었으며, 모든 난연컴파운드의 제조는 banbury형의 로터가 부착된 internal mixer(HAAKE PolyLab Rheomix 600P)를 이용하여 제조하였다. 혼련기의 내부의 온도는 175 °C로 유지시키고, 수지, 염화파라핀, 난연제 및 첨가제를 순서대로 첨가하여 25 rpm의 회전속도로 25분간 유지하여 제조하였다. 제조된 컴파운드는 hydraulic hot press를 이용하여 153 °C에서 1000 psi의 압력으로 10분간 가압 성형하여 시험편을 제조하였다.

### 2.3. 난연컴파운드의 기계적 특성 측정

폴리올레핀 난연컴파운드의 기계적 특성은 Instron사의 Universal Test Machine(UTM, model 4302)를 사용하여 측정하였다. 시편의 폭은 5 mm, 두께 2 mm의 아령형 시편으로 KS M 6158의 측정방법에 따라 인장강도 및 신장율을 측정하였다. 이때 만능시험기의 grip간의 거리는 20 mm이고 crosshead의 속도는 500 mm/min으로 하였으며 시험기의 하중보정은 매 측정시마다 실시하였다.

Table 1. Formulation for Fireproofing Polyolefin Compound using Nano Clay(MMT-25A)

Exp No.	LLDPE (phr)	Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (phr)	DBDPO (phr)	Talc (phr)	Cl-Paraffin (phr)	Nano Clay (MMT-25A) (phr)	Cabon Black (phr)	Inorganic Retardant (phr)
1	100	6	18	9	0	5	3	8
2	100	6	18	9	0	10	3	8
3	100	6	18	9	0	20	3	8
4	100	6	18	9	0	22.5	3	8
5	100	6	18	9	0	25	3	8
6	100	6	18	9	0	30	3	8
7	100	6	18	9	0	40	3	8
8	100	6	18	9	0	60	3	8

## 2.4. 난연 특성 측정

난연 특성은 크게 두 가지로 나누어 비교 측정하였다. 먼저 첫 번째로 현재 가장 많이 사용되고 있는 할로겐 난연제인 DBDPO와 일반적으로 사용되는 clay를 사용하여 난연 특성을 측정하였고, 두 번째로 유기화 처리된 nano clay(MMT-25A)와 할로겐 난연제인 DBDPO를 사용하였을 경우에 대하여 각각 측정하였다. 난연컴파운드의 난연 특성 시험은 KS M 3015의 시험방법에 따라 내연성시험 중 A방법인 수평 연소시험을 이용하여 실험하였다. 기준연소시간은 180초 미만이고, 연소거리는 25 mm미만이며 용융낙하가 없어야한다. 난연시험시편은 길이가 125 mm, 폭이 12.5 mm이고, 두께는 시료의 원래두께인 2 mm를 그대로 적용하였으며, 판정은 연소시간이 180초 이상 또는 연소거리가 100 mm이상이면 가연성이라고하고, 연소거리가 25 mm 이하인 경우는 불연성, 25 mm 이상 100 mm 이하의 경우는 자기소화성으로 한다. 난연 시험 시험장치를 Fig. 1에 나타내었다.

## 2.5. 모폴로지 측정

난연컴파운드의 모폴로지는 Leo사 주사전자현미경(Field-emission scanning electron microscope) Leo-1530을 이용하여 관찰하였다. 시편을 액체질소를 이용하여 파단하고, 그 절단면을 관찰하였다. 측정 배율은 100 및 10000배이고, 가속전압은 10 kv로 하였다.

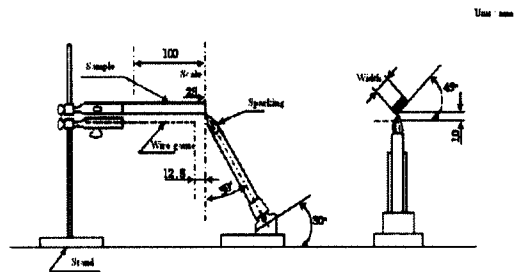


Fig. 1. Combustion behavior of fireproofing polyolefin compound.

## 2.6. 전기적 특성 측정

### 2.6.1. 내트래킹성 시험 측정

전기적 특성 시험 중 내트래킹성 시험은 KS C 3004의 시험법에 따라 측정하였다. 내트래킹성 측정은 0.2% NaCl수용액과 계면활성제인 폴리옥시에틸렌 노닐페놀에테르 7.5 mol% 수용액을 혼합하여 매 10초의 간격을 두고 4.5 kV의 교류전압을 가하여 101회 분무시에도 누설전류 및 불꽃발생여부를 측정하였다. 이때 내트래킹성 시험에 사용되는 시험시편의 길이는 가로 150 mm, 세로 30 mm이고, 두께는 시료의 원래 두께인 2 mm를 그대로 적용하였으며 본 실험에 사용된 내트래킹성 시험 장치를 Fig. 2에 나타내었다.

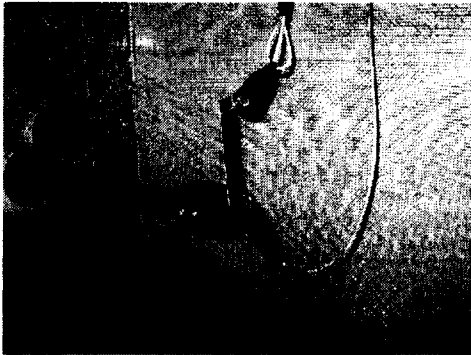


Fig. 2. Tracking test of fireproofing polyolefin compound.

### 2.6.2. 절연 파괴강도 및 전압 측정

절연 파괴강도 및 전압(dielectric breakdown voltage)은 ASTM D 149의 시험방법에 따라 AIKOKU DENKI사의 Automatic Transformer Oli Tester(OT-tester)를 이용하여 측정하였다. 시료의 연면방전을 방지하기 위해 시트를 절연유에 침적하여 측정하였으며, 인가전압은 교류전압을 전압상승법(3.0 kV/sec)으로 상승시키고, 전극간의 간격은 1.6 mm로 유지하였으며, 절연 파괴강도 및 전압 시험 장치를 Fig. 3에 나타내었다[11].

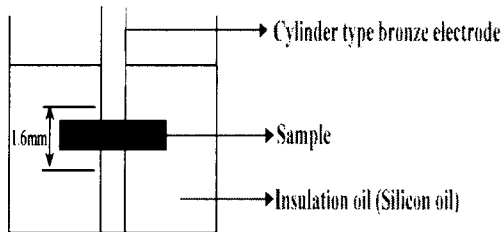


Fig. 3. Dielectric strength test of fireproofing polyolefin compound.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 난연컴파운드의 기계적 특성

난연컴파운드의 제조에서 nano clay의 첨가량에 따른 기계적 특성에 미치는 영향을 측정하기 위하여 LLDPE 100 phr, DBDPO 18 phr, 보조 난연제인  $Sb_2O_3$ 는 6 phr, talc 및 염화파라핀 함량은 9 및 5 phr로 일정하게 유지시키고 무기

첨가제인 nano clay(MMT-25A)의 첨가량을 5, 10, 20, 22.5, 25, 30, 40 및 60 phr로 각각 변화시켜 컴파운드를 제조하였다. 제조된 컴파운드를 사용하여 시편을 제조한 다음 이들 시편에 대하여 기계적 특성인 인장강도 및 신장율을 측정하고 그 결과를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 보면 nano clay(MMT-25A)의 첨가량이 5 phr인 경우 인장강도는  $1.722 \text{ kgf/mm}^2$ , 신장율은 717%인데 반하여 nano clay(MMT-25A)의 첨가량을 10 및 60 phr로 증가시킨 경우 1.67 및  $1.21 \text{ kgf/mm}^2$ 로 감소하는 경향을 나타내며 또한 신장율의 경우 700%에서 34%로 급격히 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 nano clay(MMT-25A)를 첨가하여도 무기 filler의 함량이 증가되면 신장율이 감소되는 현상과 유사한 결과와 일치하게 되는 것으로 사료된다. 따라서 이상의 시험 결과로부터 고전압전기절연재료로 응용하기 위한 기계적 물성의 측면에서 고려해볼 때 nano clay(MMT-25A)의 적정 첨가량은 20~22.5 phr정도 이내에서 사용하는 것이 바람직하다고 판단된다.

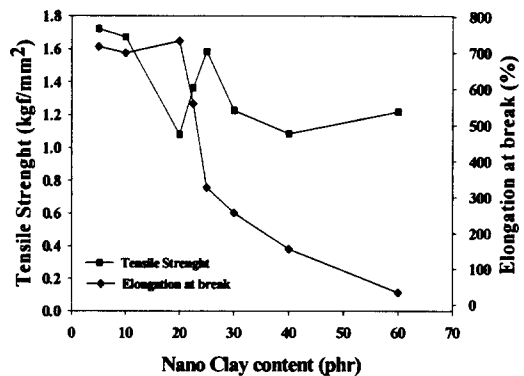


Fig. 4. Mechanical properties of fireproofing polyolefin compound.

### 3.2. 난연 특성

난연컴파운드의 난연 특성에 미치는 영향을 측정하기 위하여 DBDPO/clay 및 DBDPO/nano clay(MMT-25A)의 첨가량을 변화하여 컴파운드를 제조하고, KS M 3015의 시험 방법 중 수평연소시험법을 이용하여 난연컴파운드의 난연 특성을 시험하였다. 30초간 접염 후 불꽃을 제거한 다음, 그 순간부터 연소시간 및 연소

거리를 측정하여, 연소시간이 180초 이상 또는 연소거리가 100 mm이상이면 가연성으로, 연소거리가 25~100 mm이면 자기소화성으로 그리고 연소거리가 25 mm 미만인 경우 불연성으로 각각 판정하였다.

**3.2.1. DBDPO/Clay의 함량변화**

주요 난연제인 DBDPO의 첨가량을 40 phr로 일정하게 유지시킨 다음 무기첨가제로 사용된 clay의 함량을 25, 30, 및 35 phr로 혼합하고, 다른 성분의 함량을 일정하게 유지하여 컴파운드를 제조하고 난연 특성을 시험한 결과 Table 2에 나타내었다. Table 2에서 보는 바와 같이 clay의 함량이 30 phr인 경우 연소시간은 2~19 초, 연소거리는 약 5.5~15 mm 정도로 우수하게 나타났다.

**3.2.2. DBDPO/Nano Clay(MMT-25A)의 함량변화**

주요난연제인 DBDPO의 첨가량을 18 phr로 일정하게 유지시킨 다음 nano clay(MMT-25A)의 함량을 5, 10, 20, 22.5, 25, 30, 40 및 60 phr로 혼합하고, 다른 성분의 함량을 일정하게 유지시킨 다음 컴파운드를 제조하고 난연 특성을 시험한 결과 Table 3에 나타내었다. Table 3에서 보는 바와 같이 주요 난연제인 DBDPO의 함량이 18 phr, 무기첨가제인 nano clay(MMT-25A)의 함량이 22.5 phr인 경우 연소시간은 10~18초, 연소거리는 약 12~15 mm, 용융낙하는 발생하지 않았으며 판정결과 불연성으로 가장 우수한 결과를 나타내었다. 또한, nano clay(MMT-25A)의 함량이 증가할수록 연소시간 및 연소거리가 감소하는 경향을 나타내

Table 2. Flame Retardant Effect of Polyolefin Compound according to DBDPO/Clay Content

Flame retardant content (phr)	DBDPO Clay CI Paraffin	40	40	40
		25	30	35
		8	8	8
Combustion time (sec)		9~13	2~19	15~86
Combustion Dist (mm)		20	5.5~15	10~20
Melt Dropping (○/×)		○	×	○
Judgment		incombustibility	incombustibility	incombustibility

Table 3. Flame Retardant Effect of Polyolefin Compound According to DBDPO/Nano Clay(MMT-25A) Content

Flame retardant content (phr)	Nano Clay DBDPO Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5	10	20	22.5	25	30	40	60
				18	18	18	18	18	18
		6	6	6	6	6	6	6	6
Combustion time (sec)		2~10	11~12	53~70	10~18	52~68	46~78	51~91	0~46
Combustion Dist (mm)		10~16	7~13	24~73	12~15	27~34	15~15.5	10	10~15
Melt Dropping (○/×)		○	○	×	×	×	×	×	×
Judgment		incombustibility	incombustibility	incombustibility	incombustibility	incombustibility	incombustibility	incombustibility	incombustibility

었다. 따라서, 위의 두 가지 실험결과로부터 현재 가장 많이 사용되고 있는 할로겐 난연제인 DBDPO의 양을 유기화처리된 nano clay(MMT-25A)를 사용하였을 경우 DBDPO의 양을 기존 양에 비하여 절반정도 사용하여도 종전과 똑같은 난연 특성 효과를 나타내었다.

### 3.3. 모폴로지 특성

난연컴파운드의 모폴로지를 주사전자현미경을 이용하여 관찰하고, 그 결과를 Fig. 5의(a), (b)에 나타내었다. Fig. (a)의 경우 LLDPE/nano clay의 함량의 비를 100 : 22.5 phr로 컴파운딩하여 시험편을 제조하고 파단면을 관찰한 것으로 파단면이 날카롭고, nano clay filler가 수지인 LLDPE matrix에 잘 분산되어 있는 것으로 관측되었다. 반면에 Fig. (b)의 경우 nano clay와 LLDPE, 난연제 및 각종 첨가제를 컴파운딩하여 시험편을 제조하고 파단면을 관찰한 것으로 파단면은 비교적 매끈하게 나타났으나, LLDPE matrix상에 nano clay filler 및 각종 첨가제가 (a)의 경우처럼 잘 분산되었는지는 뚜렷하게 관찰되지 않았으나 대체적으로 각종 무기 filler들이 균일하게 분산되어 있음을 알 수 있었다.

### 3.4. 전기적 특성

#### 3.4.1. 내트래킹성

전기적 특성 중 내트래킹성을 알아보기 위하여 각 성분 화합물들의 배합비율에 따라 컴파운

드당하여, 시편을 제조한 다음 KS C 3004의 시험법에 따라 시험을 실시하였다. 시험시편의 길이를 가로 150 mm, 세로 30 mm, 두께는 시료의 원래두께인 2 mm로 하고, 0.2% NaCl수용액과 계면활성제인 폴리옥시에틸렌 노닐페놀에테르 7.5 mol%가 혼합된 용액을 매 10초의 간격을 두고 분무해준 다음 4.5 kV의 교류전압을 가하여 측정하였다. 측정된 결과 101회 분무시에도 누설전류 및 불꽃발생이 없어야한다. 실험결과 누설전류 및 불꽃은 발생하지 않았다. 따라서 내트래킹성은 양호한 것으로 판단된다.

#### 3.4.2. 절연파괴 강도 및 전압

절연파괴 강도 및 전압은 재료가 어느 정도 높은 전압에 견디어 낼지를 측정하는 가장 기본적인 전기적 시험이고 절연재료에 전압을 인가하였을 때 재료가 파괴되는 최소의 전압이다. 절연파괴 강도 및 전압을 측정하기 위하여 clay 및 nano clay를 사용하여 각 성분 화합물들의 배합비율에 따라 최종적으로 확립된 컴파운드비에 따라 컴파운딩을 하고 시편을 제조한 다음 측정하였다. 이때, 시험시편의 길이는 가로 80 mm, 세로 80 mm, 두께는 2 mm였으며 측정된 결과를 Table 4에 나타내었다. Table 4에서 보는 바와 같이 절연파괴 전압은 clay를 사용하여 제조된 최종 컴파운드의 시편인 경우 66.55 및 61.85 kV를 나타내었고, nano clay를 사용하여 제조된 최종 컴파운드의 시편인 경우 63.28 및 60.93 kV를 나타내었다. 또한 절연파괴 강도는 위에서 측정된 절연파괴 전압에서 구해진 각각

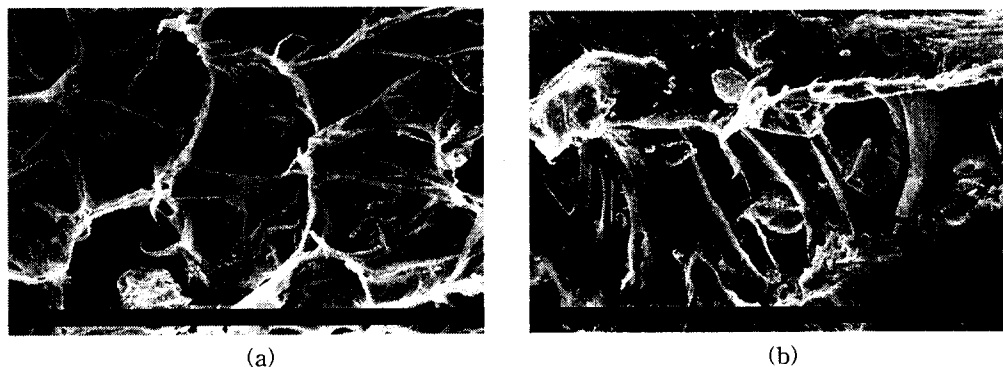


Fig. 5. SEM images of fireproofing polyolefin compound using nano clay (MMT-25A).  
 (A) LLDPE / nano clay (MMT-25A) (100 / 22.5 phr)  
 (B) LLDPE compound containing flame retardant, MMT-25A, and Fillers

Table 4. Dielectric Breakdown Voltage & Strength Test Result Fireproofing Polyolefin Compound using Clay/Nano Clay

Dielectric Breakdown Voltage(kV)		Dielectric Strength(kV/mm)	
Fireproofing Polyolefin compound using Clay	Fireproofing Polyolefin compound using Nano Clay	Fireproofing Polyolefincompound using Clay	Fireproofing Polyolefincompound using Nano Clay
66.55	63.28	33.27	31.64
61.85	60.93	30.92	30.46

의 값을 아래의 식 (1)에 대입하여 구하였다.

$$Dielectric\ Strength = \frac{Dielectric\ Breakdown\ Voltage}{Dielectric\ thickness} \dots\dots(1)$$

그 결과 clay를 사용하여 제조된 최종 컴파운드의 경우 33.27 및 30.92 kV/mm를 나타내었고, nano clay를 사용하여 제조된 최종 컴파운드의 시편인 경우 31.64 및 30.46 kV/mm를 각각 나타내었다. 위의 실험 결과 절연파괴 강도 및 전압은 기준치인 30.0 kV/mm를 넘는 것으로 보아 절연파괴 강도 및 전압은 양호한 것으로 판단되었다.

**4. 결 론**

전기·전자 및 케이블, 전선피복, 절연카바 등에 광범하게 사용되고있는 난연제는 할로젠 난연제인 DBDPO로서 폴리올레핀계 난연컴파운드를 제조하는데 있어서 유기화 처리된 nano clay(MMT-25A), filler를 사용하여 난연성 폴리올레핀 컴파운드를 제조하고 얻은 결론은 다음과 같다.

1. 난연성 폴리올레핀 컴파운드를 제조하는데 있어서 최적배합비율은 LLDPE의 함량 100 phr에 대하여 난연제인 DBDPO 및 Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 함량은 18 및 6 phr, 무기보조 첨가제인 talc 및 유기화처리된 nano clay의 함량은 각각 9, 22.5 phr, carbon black 및 무기보조난연제를 각각 3 및 8 phr였다.
2. Nano clay(MMT-25A)를 사용하여 제조한 난연컴파운에 대한 기계적 특성 중 인 장강

도 및 신장율을 측정 한 결과 nano clay의 함량이 22.5 phr 첨가된 경우 1.368 kgf/mm<sup>2</sup> 및 559.45%로 가장 우수하였다.

3. 난연컴파운드의 난연 특성을 측정 한 결과 난연제인 DBDPO의 함량을 18 phr, 유기화 처리된 nano clay를 22.5 phr로 컴파운딩하여 얻은 시편에 대해 연소시간은 10~18 초, 연소거리는 12~15 mm, 용융낙하는 발생하지 않았으며 판경결과 불연성으로 판정되어 난연 특성은 우수하였다.
4. 제조한 nanocomposite에 대한 전기적 특성 중 내트래킹성을 측정 한 결과 모든 시편의 표면에 누설전류 및 불꽃 발생은 관찰되지 않았으며 또한 절연파괴전압을 측정 한 결과 63.28 및 60.93 kV를 각각 나타내었다.

**감사의 글**

이 연구는 2002학년도 단국대학교 대학연구비의 지원으로 연구되었음.

**참고문헌**

1. Harri Lehtinen, "Cast Resin in Outdoor Insulation", CIGRE, pp. 22~80 (1980).
2. Korea Plastic Cooperative Society, *The Monthly Plastic Korea*, 8, 115 (1994).
3. S. B. Kwak, C. H. Jung, J. D. Nam, J. H. Kim, M. A. Choi, and J. H. Kong, *Polymer(Korea)*, 24, 777 (2000).

4. S. K. Jang, S. K. Shin, and T. S. Kim, *Analytical Science & Technology*, **14**, 83A (2001).
5. M. S. Karaivanova and K. H. Gjurova, *J. Appl. Polym. Sci.*, **49**, 159 (1993).
6. Y. Kojima, A. Usuki, M. kawasumi, A. Okada, T. Kurauchi, and O. Kamigation, *J. Polym. Sci., Part A : Polym. Chem.*, **31**, 983 (1993).
7. Y. Kojima, A. Usuki, M. kawasumi, A. Okada, A. Fujushima, T. Kurauchi, and O. Kamigaito, *J. Mater. Res.*, **8**, 1185 (1993).
8. G. S. Sur, J. G. Ryu, S. G. Lyu, H. K. Choi, and B. S. Kim, *J. Korean. Ind. Eng. Chem.*, **10**, 615 (1999).
9. Y. H. Lee, S. K. Hong, K. S. Yoon, I. S. Choi, S. G. Lee, J. H. Lee, and K. Y. Choi, *Polymer(Korea)*, **25**, 818 (2000).
10. X. Fu, S. Qutubuddin, *Materials Letters*, **42**, 12 (2000).
11. D. W. Kang, B. J. Kim, and D. S. Shim, *J. Korean. Ind. Eng. Chem.*, **12**, 277 (2001).