

## 인을 함유하는 고분자에 의한 에폭시 수지의 난연성 향상 연구

박영란·윤태호<sup>†</sup>·육종일\*·이승구\*\*

광주과학기술원 신소재공학과, \*국방과학연구소, \*\*충남대학교  
(1998년 2월 23일 접수)

### Enhanced Flame Resistance of Epoxy Resin with Phosphorus Containing Polymers

Y. R. Park, T. H. Yoon<sup>†</sup>, J. I. Yuck\*, and S. G. Lee\*\*

Kwangju Institute of Sci. & Tech., \*Agency for Defense Development, \*\*Chungnam National University

<sup>†</sup>e-mail: thyoon@kjist.ac.kr

(Received February 23, 1998)

**요약:** 인을 함유하는 단량체 (bis(3-aminophenyl)-methyl phosphine oxide (DAMPO), bis(3-aminophenyl)-phenyl phosphine oxide (DAPPO), bis[(3-aminophenoxy)phenyl] methyl phosphine oxide (BAMPO) and bis[(3-aminophenoxy)phenyl]phenyl phosphine oxide (BAPPO)) 및 고분자 (poly(arylene ether phosphine oxide))를 합성하여 에폭시 수지의 경화제 및 강인화제로 사용하였다. 또한 poly(arylene ether sulfone)도 합성하여 비교시료로 사용하였다. 합성된 고분자는 분자량을 15000 또는 20000 g/mole로 제어하였으며, 아민 말단기를 가지도록 하여 에폭시 수지와 반응하도록 하였다. 에폭시 수지의 난연성은 일차로 TGA로 분석한 후, PEPO로 강인화된 에폭시 시편에 한하여 연소시험을 실시하였다. 인을 함유한 단량체로 경화된 에폭시 수지나 PEPO로 강인화된 수지 모두 아주 우수한 난연성을 보여주었다.

**ABSTRACT:** Phosphorus (P) containing monomers such as bis(3-aminophenyl)-methyl phosphine oxide (DAMPO), bis(3-aminophenyl)-phenyl phosphine oxide (DAPPO), bis[(3-aminophenoxy)phenyl] methyl phosphine oxide (BAMPO), and bis[(3-aminophenoxy)phenyl]phenyl phosphine oxide (BAPPO) and polymer such as poly(arylene ether phosphine oxide) was synthesized and utilized as curing agents or tougheners for epoxy resins, respectively. Poly(arylene ether sulfone), PES, was also prepared for comparison. The polymers were designed to have the molecular weight of 15000 or 20000 g/mole and amine end-groups so that they can react with epoxy groups. Flame retardancy of all epoxy samples were analyzed by TGA and only PEPO toughened samples were subjected to flame tests. The epoxy samples cured with P-containing monomers as well as toughened with PEPO exhibited excellent flame retardancy.

**Keywords:** epoxy resin, P-containing monomers, PEPO, PES, flame retardancy.

### 서 론

고능성 고분자 복합재료는 구조물의 경량화에서 다른 재료들에 비해 많은 장점을 지니고 있어 널리 사용되고 있으며, 특히 우주·항공분야에서의 사용이 급

증하고 있다. 하지만 우주·항공분야에 사용되기 위해서는 높은 비강도 이외에 우수한 강인성, 내열성 및 난연성이 요구되어진다. 일반적으로 에폭시 수지는 저렴한 가격, 우수한 기계적·열적 특성 및 접착특성으로 인하여 고성능 고분자 복합재료 제조에 널리 사

용되고 있으나, 낮은 강인성과 난연성이 걸림돌이 되고 있다.

현재까지 알려진 에폭시 수지의 강인화는 일반적으로 고무 첨가제 (CTBN : carboxyl-terminated acrylonitrile butadiene, ATBN : amine-terminated acrylonitrile butadiene 등)와 고성능 고분자 (폴리설폰, 폴리이미드 등)가 널리 사용되고 있다.<sup>1-3</sup> 하지만 고무는 낮은 유리전이온도 ( $T_g$ )로 인하여 고온에서의 물성을 저하시키는 반면에,  $T_g$ 가 높고 강인성이 우수한 폴리설폰과 폴리이미드는 반응성의 부재로 인하여 단순히 블렌딩 차원에 머물고 있어 에폭시 수지의 가장 큰 장점 중 하나인 내용매성이 저하되는 결과를 초래하고 있다. 따라서 내용매성을 저하시키지 않으면서 강인성을 향상시킬 수 있는 방법으로 McGrath에 의하여 제안된 아민 말단기를 가지는 고분자를 사용하여 얻을 수 있다.<sup>4-8</sup>

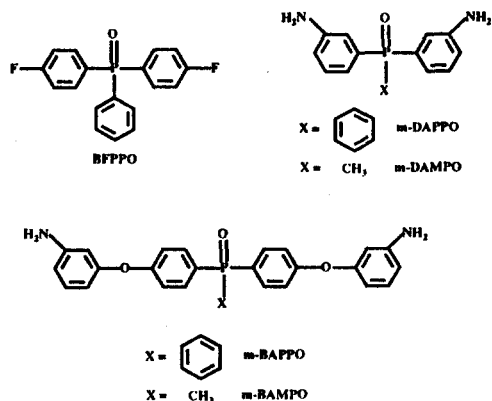
에폭시 수지의 난연성 향상은 크게 두가지 방법으로 얻어지는데, 첫째는 에폭시 수지를 구성하는 Bis-A 중 벤젠링에서 H가 Br로 치환된 즉 bromination 방법으로 현재 상업생산이 이루어지고 있으며, 둘째는 첨가형 난연제의 사용으로 고분자의 난연성 향상에 널리 사용되고 있다.<sup>9-11</sup> 하지만 이들 첨가형 난연제는 쉽게 탈리되는 문제점이 있으며, 또한 할로겐 화합물 난연제는 연소시 유독가스를 발생하기 때문에 사용에 제한을 받고 있다. 하지만 최근 McGrath에 의하면 인 (P)을 함유하는 고분자는 고분자 내의 인으로 인하여 우수한 난연성을 보이며 또한 고분자이기 때문에 쉽게 탈리되는 현상을 방지할 수 있는 것으로 알려져 있다.<sup>12-14</sup>

따라서 고분자 복합재료의 제조에 널리 사용되는 에폭시 수지의 강인성 및 난연성을 동시에 향상시킬 수 있는 방법 중의 하나로 인을 함유하는 고분자를 사용하고자 하였다. 일반적으로 인계 난연제는 연소시 유독가스의 발생이 없고 우수한 난연성으로 인하여 첨가형으로도 널리 사용되고 있으나, 앞에서 언급된 탈리현상 때문에 사용에 제한을 받아왔다. 본 연구에서는 난연성이 우수한 것으로 알려진 인을 함유하는 단량체를 합성하여 에폭시 수지의 경화제로 사용하고 또한 이들 단량체로 고분자를 합성하여 에폭시 수지에 혼합하여 에폭시 수지의 난연성을 향상시키고자 하였다.

## 실 험

**재 료.** 본 연구에 사용된 에폭시 수지는 diglycidyl ether of bisphenol-A (Epikote 828, EEW=188)로서 액상이며, 금호-셀사에서 공급받아 사용하였다. 경화제로는 4,4'-diaminodiphenylsulfone (DDS, Aldrich)과 본 실험실에서 합성한 bis(3-aminophenyl)-methyl phosphine oxide (DAMPO), bis(3-aminophenyl)-phenyl phosphine oxide (DAPPO), bis[(3-aminophenoxy)phenyl] methyl phosphine oxide (BAMPO) 및 bis[(3-aminophenoxy)phenyl]phenyl phosphine oxide (BAPPO)를 사용하였다 (Scheme 1). 인을 함유하는 고분자인 poly(arylene ether phosphine oxide) (PEPO)는 인을 함유하는 단량체인 bis(4-fluorophenyl)phenyl phosphine oxide (BFPPPO)를 이용하여 본 실험실에서 합성하여, 에폭시 수지의 난연성 향상제로 사용하였다. 또한 비교 시료로 에폭시 수지의 강인화에 널리 사용되는 poly(arylene ether sulfone) (PES)를 합성하여 사용하였다. 이들 고분자는 수평균 분자량이 15000 및 20000 g/mole 이 되도록 제어합과 동시에 *m*-aminophenol을 이용하여 고분자 말단에 NH<sub>2</sub> 반응기를 가지도록 하여 에폭시 수지와 반응할 수 있도록 하였다.

**인을 함유하는 단량체의 합성 및 분석.** 본 실험에서 합성된 인을 함유하는 단량체는 모두 5가지로 DAPPO, DAMPO, BAMPO, BAPPO 및 BFPPPO



**Scheme 1.** P-containing monomers for epoxy curing and/or PEPO synthesis.

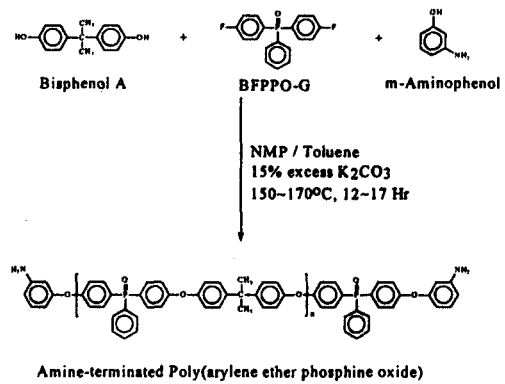
이다. 이 중에서 BFPPPO는 BAPPO 및 PEPO의 합성에 사용되었고 에폭시 수지의 경화에는 사용되지 않았다. 이들 단량체에 대한 자세한 합성 방법은 잘 알려져있다.<sup>13-15</sup>

DAPPO는 DNPPPO로부터 얻어지는데, bis(3-nitrophenyl)-methyl phosphine oxide (DNPPPO)는 triphenyl phosphine oxide (TPPO)를 황산과 질산을 이용하여 질화시켜 얻는다. 이렇게 얻어진 DNPPPO는 Pd/C 촉매 하에서 하이드라진을 이용한 수소화 반응에 의하여 아민 말단기가 부착된 DAPPO를 얻는다. DAMPO는 DAPPO와 합성 방법이 매우 비슷하나, 시작단계에서 TPPO대신에 bis(3-phenyl)methyl phosphine bromide (MTPB)를 사용한다.

Bis(4-fluorophenyl) phenyl phosphine oxide (BFPPPO)는 잘 알려진 Grignard반응에 의하여 합성되어지는데, *p*-bromofluorobenzene을 THF용매 하에서 magnesium turning과 반응시킨 후 여기에 다시 phenylphosphonic dichloride를 반응시켜 BFPPPO를 얻는다. 이를 다시 *m*-aminophenyl과 반응시켜 BAPPO를 얻는다. BAMPO는 모든 과정이 BAPPO의 합성과 같지만, 차이점은 시작단계에서 phenylphosphonic dichloride 대신에 methyl dichlorophosphonite를 사용하는 것이다. 합성된 단량체는 FT-IR (Perkin Elmer 2000), 300 MHz NMR (Jeol 400 MHz) 및 용융점 측정 (Electrothermal 9100)으로 분석하였다.

**Poly(arylene ether phosphine oxide)의 합성 및 분석.** 문헌에 발표된 합성방법에 따라<sup>13</sup> PEPO는 Grignard 반응에 의해 합성된 BFPPPO와 정제된 Bis-A 및 *m*-aminophenol을 이용하여 합성하였다 (Scheme 2). 수평균 분자량은 Carother의 계산식에 의해서 15000 및 20000 g/mole로 조절하였으며, PES도 같은 방법으로 합성하여 비교 시료로 사용하였다. 합성된 고분자는 물/메틸알콜 용액에 침전시켜 분말 형태로 만들어 완전히 건조시킨 후, 다시 CH<sub>3</sub>Cl에 용해하여, 침전·건조과정을 반복하였다.

얻어진 고분자를 진공 오븐에서 완전히 건조시킨 후에, 점도 측정, 말단기분석 및 열분석을 실시하였다. 점도 측정은 모세관 점도계를 이용하였으며, 클로로포름 용액으로 25 °C에서 실시하였다. 말단기분



**Scheme 2.** Synthesis of poly(arylene ether phosphine oxide).

석은 자동말단기 분석장치인 메트롭사의 Auto-titrator 670을 사용하고 염산을 이용하여 실시하였다. 열분석은 TA Instrument사의 TGA 2050과 DSC 2010을 이용하였으며, TGA 측정은 공기분위기 하에서 10 °C/min으로 800 °C까지 승온시켜 실시하였으며, DSC 측정은 질소분위기 하에서 10 °C/min으로 250 °C까지 승온시켰으며, 두 번 실시하였다.

**에폭시 수지의 경화 및 강인화.** 모든 에폭시 수지의 경화반응은 에폭시 수지 내의 에폭시기와 경화제 및 첨가제의 아민 반응기 사이에 완전한 화학적 당량비 (1:1)가 성립하도록 하여, 경화된 에폭시 수지가 최대의 열적 기계적 및 화학적 내식성을 갖도록 하였다. 에폭시 수지의 경화는 약 140 °C에서 경화제를 에폭시 수지에 녹인 후, 휘발성 물질들을 진공오븐에서 제거한 다음, 미리 최적화된 130 °C에서 4시간과 220 °C에서 2시간의 2단계 경화 방법을 사용하였다.

열가소성 고분자인 PEPO 및 PES로 강인화된 에폭시 시료의 제조는 고분자를 약 140 °C의 에폭시 수지에 녹인 다음 진공오븐에서 기포를 제거하고, 다시 경화제를 첨가하여 녹인 후, 진공오븐에서 다시 기포를 제거한 후 130 °C로 예열된 실리콘 고무 물드에 조심스럽게 부어 오븐에서 경화시킨 후 서서히 냉각시켰다. 에폭시 수지에 첨가된 고분자의 양은 5 wt%에서 PES는 30 wt%까지 용매의 사용없이 녹일 수 있었으며 PEPO는 25 wt%까지 녹일 수 있었다.

모든 에폭시 시료는 DSC 및 TGA를 이용하여 열

분석을 실시하였으며, PEPO 및 PES로 강인화된 에폭시 시료는 SEM (Jeol JSM-5800)을 이용하여 상분리를 관찰하였다. 유리전이온도는 TA-2010 DSC를 사용하여 질소분위기 하에서 10 °C/min으로 250 °C까지 승온시켜 측정하였으며, 시료의 열안정성은 TA-2050 TGA로 공기분위기 하에서 10 °C/min으로 800 °C까지 승온시켜 측정하였다. SEM용 시편은 Au-Pd으로 표면을 코팅하여 사용하였으며, 10-15 kV로 분석하였다.

고분자 및 에폭시 시료의 연소시험. PEPO 필름 및 PEPO로 강인화된 에폭시 시료의 난연성 분석은 TGA분석 뿐만 아니라 가스 라이타를 이용한 연소시험으로도 측정하였으며, PES 필름 및 PES로 강인화된 에폭시 시료와 비교하였다. 연소시험용 PEPO 및 PES 필름은 고온 프레스를 이용하여 280 °C의 온도에서 두께가 약 1 mm가 되도록 제조하였으며, 7×20 mm 크기로 잘라 사용하였다. 에폭시 시료는 3×6×20 mm크기의 시편을 제조하여 사용하였다. 연소시험에서는 시료를 불꽃에 넣어 연소가 시작될 때까지의 시간 및 시료가 불꽃으로부터 꺼내진 후 연소가 지속되는 시간을 측정하여 난연성을 비교하였다.

### 결과 및 고찰

#### 인을 함유하는 단량체 및 고분자의 합성 및 분석.

본 실험에서 합성된 인을 함유하는 단량체는 NMR 및 FT-IR로 분석한 결과 모두 원하는 분자구조를 가진 것으로 확인되었으며, 분자량 및 용점을 Table 1에 정리하였다. Table 1에서 보는 바와 같이 벤젠 고리 대신에 CH<sub>3</sub>가 붙어있는 BAMPO 및 DAMPO가 BAPPO 및 DAPPO보다 낮은 용점을 보여주고 있다. 또한 DAPPO가 BAPPO보다 높은 용점을 보여주고 있는데 이는 BAPPO의 분자구조에서 벤젠고리를 연결시켜주는 산소의 영향으로 보여진다. 이러한 단량체의 용점은 에폭시 경화제로 사용할 때 매우 중요한 요소가 된다.

아민 말단기를 가지는 PEPO와 PES의 수평균 분자량은 말단기분석과 고유점도 측정을 통해 이루어졌으며, 이는 예상했던 수평균 분자량에 잘 일치됨을 보여준다 (Table 2). 또한 DSC에 의해 측정되어진 PES (20 k)와 PEPO (20 k)의 유리전이온도는 각각

**Table 1. Characteristics of P-Containing Monomers**

P-containing monomer	molecular weight (g/mole)	melting point (°C)
<i>m</i> -BAMPO	430.5	80
<i>m</i> -BAPPO	492.5	91
<i>m</i> -DAMPO	246.3	152
<i>m</i> -DAPPO	308.3	203
<i>p</i> -DDS	248.3	175

**Table 2. Characteristics of PEPO and PES**

	cal. $\langle M_n \rangle$	end-group	tit. $\langle M_n \rangle$	$[\eta]$ (dL/g) <sup>a</sup>	$T_g$ (°C) <sup>b</sup>
PES	15000	NH <sub>2</sub>	16771	0.25	181
	20000	NH <sub>2</sub>	20784	0.28	185
PEPO	15000	NH <sub>2</sub>	16293	0.33	187
	20000	NH <sub>2</sub>	21973	0.38	192

<sup>a</sup> 25 °C, Chloroform. <sup>b</sup>  $T_g$  by DSC, 2nd heat in nitrogen.

185 °C와 192 °C를 보여주고 있으며, 예상대로 분자량이 낮은 고분자는 약간 낮은 유리전이온도 ( $T_g$ )를 보여주었다.

공기분위기 하의 TGA 분석에서 PES는 2단계의 열분해 과정을 거쳐 700 °C 부근에서 모두 분해가 되어 잔류량이 0%가 되는 반면에, PEPO는 500 °C 부근에서 30% 정도로 급격히 감소한 다음 서서히 감소하여 800 °C에서 잔류량이 약 10%가 되고 있다 (Fig. 1). 따라서 670 °C까지는 PES가 더 안정한 반면에, 그 이상의 온도에서는 PEPO가 더 안정한 것으로 판단된다.

인을 함유한 단량체로 경화된 에폭시 수지의 분석. 4,4'-DDS로 경화된 에폭시의  $T_g$ 는 195 °C 정도 인 반면에 인을 함유하는 단량체로 경화된 에폭시 수지의  $T_g$ 는 170 °C (BAMPO), 181 °C (BAPPO), 177 °C (DAMPO), 180 °C (DAPPO)로 DDS로 경화된 에폭시 수지보다 낮은  $T_g$ 를 보여주고 있는데, 이는 이들 단량체가 가지는 meta linkage 때문으로 풀이된다. 따라서  $T_g$ 를 높이려면 para linkage를 가지는 단량체의 합성이 요구된다.

경화된 에폭시 수지는 2단계의 열분해 과정을 거치며, 열분해는 PEPO 및 PES보다 약 100 °C 낮은 400 °C 부근에서 시작하여 50% 정도로 급격히 감소한 다음 다시 열분해 과정을 거쳐 600 °C 부근에서

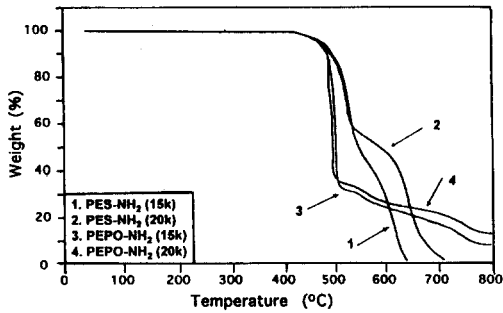


Figure 1. TGA curves of PEPO and PES.

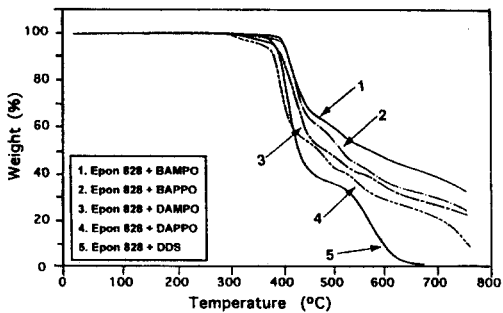


Figure 2. TGA curves of cured epoxy resins with P-containing monomers.

잔류량이 0%가 됨을 알 수 있다(Fig. 2). 인을 함유하는 단량체인 DAMPO, DAPPO, BAMPO 및 BAPPO로 경화된 에폭시 수지는 공기분위기 TGA 분석에서 난연성의 기준이 되는 char의 생성이 매우 높음을 알 수 있다.

600 °C에서 TGA결과를 분석해보면, DDS, DAPPO, DAMPO, BAPPO, BAMPO 순으로 잔류량이 증가함을 알 수 있다(Table 3). DDS로 경화된 에폭시 수지의 잔류량은 600 °C와 760 °C에서 각각 8.4%와 0%인데 비해, BAMPO로 경화된 에폭시 수지의 경우 각각 47.3%와 31.8%임을 알 수 있다. 그리고 DAPPO와 BAPPO로 경화된 경우가 DAMPO와 BAMPO로 경화된 경우보다 더 낮은 잔류량을 나타내는데 이는 벤젠 고리와 CH<sub>3</sub>의 무게차이에 의한 것으로 보여진다.

PEPO로 강인화된 에폭시 수지의 분석. 4,4'-DDS로 경화된 에폭시의 T<sub>g</sub>는 195 °C 정도이며, PEPO로 강인화된 에폭시 수지는 하나의 T<sub>g</sub>를 보이는 반면에 PES가 첨가된 시료 첨가량이 10%이상에서 두

Table 3. TGA Results of Cured Epoxy Resins with P-Containing Monomers

epoxy sample	T <sub>g</sub> (°C)	weight remained <sup>a</sup> (%)	
		at 600 °C	at 760 °C
EPON 828+DAPPO	180	29.0	8.25
EPON 828+DAMPO	177	34.9	20.3
EPON 828+BAPPO	181	37.5	21.6
EPON 828+BAMPO	170	47.3	31.8
EPON 828+PDDS	195	8.4	0

<sup>a</sup> Measured in air.

Table 4. T<sub>g</sub> of PEPO and PES Toughened Epoxy Resins

tougher (wt%)	T <sub>g</sub> (°C)	
	PEPO-NH <sub>2</sub> (15k)	PES-NH <sub>2</sub> (15k)
0	195	195
5	192	192
15	191	182, 192
25	194	184, 193

개의 T<sub>g</sub>를 보여주는데 이는 PES의 상분리 때문으로 풀이된다(Table 4). PEPO와 경화된 에폭시 수지가 비슷한 T<sub>g</sub>를 보여주기 때문에 상분리 현상을 정확히 알아보기 위하여 SEM을 사용한 결과, PEPO로 강인화된 에폭시 수지는 상분리 현상을 보여주지 않았지만, 두 개의 T<sub>g</sub>를 보여주는 PES로 강인화된 에폭시 시료는 뚜렷한 상분리 현상을 보여주었다.

PEPO로 강인화된 에폭시 시료의 열안정성은 첨가된 PEPO의 양이 증가할수록 향상되고 있으며, 단지 5 wt%의 첨가만으로 아주 우수한 열안정성을 보여주고 있다(Fig. 3). PEPO로 강인화된 에폭시는 600 °C이하에서는 PES로 강인화된 에폭시 수지와 비슷한 열안정성을 나타내지만, 600 °C이상에서는 PEPO로 강인화된 시료가 매우 높은 잔류량을 보여준다(Fig. 4). PES로 강인화된 에폭시 시료는 650 °C에서 잔류량이 0%인데 반하여, PEPO로 강인화된 에폭시 시료는 700 °C에서도 높은 잔류량을 보여주고 있다. 따라서 인을 함유하는 단량체로 경화된 에폭시 수지나 인을 함유하는 고분자를 함유한 에폭시 수지 모두 아주 높은 난연성을 보여주고 있는데, 이는 인을 함유하는 단량체의 영향으로 사료된다.

고분자 및 에폭시 수지의 연소시험. 강인화된 에폭시 수지의 난연성 분석에 앞서 PES와 PEPO 필름

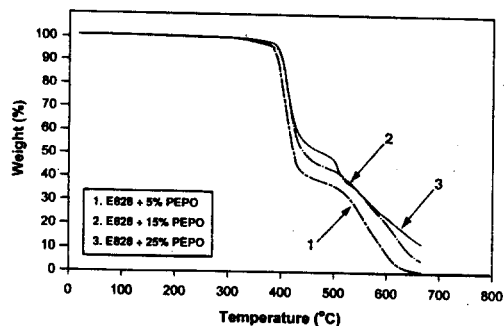


Figure 3. TGA curves of PEPO toughened epoxy resins.

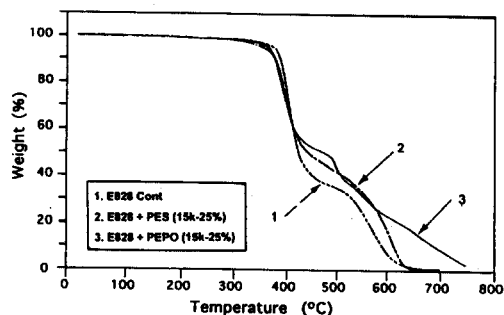


Figure 4. Comparison of TGA curves of PEPO and PES toughened epoxy resins.

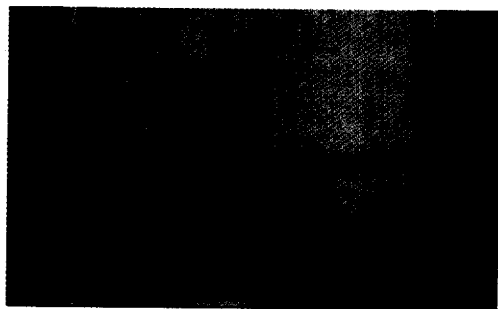


Figure 5. Flame testing of epoxy resins modified with PEPO(15k, 20%) and PES (15k, 20%).

의 연소시험을 실시하였다. PES필름은 가스 라이타에 의해 점화되는데 약 30초정도가 걸렸으며, 불꽃으로부터 꺼낸 후에도 계속 연소되어 필름 전체가 완전히 연소되었으며, 일반적인 PE필름의 연소와 비슷하였다(Fig. 5). 하지만 PEPO필름의 경우 점화되는데 걸린 시간은 약 1분이며, 버너의 불꽃에서 나온

순간에 연소가 멈추었다.

PES로 강인화된 에폭시 시료와 DDS로 경화된 에폭시 시료 모두 PES필름과 같이 시료 전체가 모두 연소될 때까지 연소가 계속되는 반면에, 20% PEPO로 강인화된 에폭시 수지는 20-30초정도만 연소가 진행된 후 스스로 소화되었다. 라이타에 의한 연소는 일반적으로 일어나는 화재에 비교할 수 없지만, PEPO에 의한 에폭시 수지의 난연성 향상은 확인되었다.

### 결론

1. 인을 함유하는 단량체인 DAPPO, DAMPO, BAPPO 및 BAMPO를 합성하여 에폭시 수지의 경화제로 사용하였으며, 경화된 에폭시 수지는 170-180 °C 정도의  $T_g$ 와 아주 높은 난연성을 보였다.
2. 인을 함유하는 고분자인 PEPO는 에폭시 수지의 난연성 향상에는 좋은 효과를 보였다.
3. 연소시험에서도 인을 함유하는 고분자를 함유한 에폭시 시료는 비교 시료에 비하여 우수한 난연성을 보여주었다.

감사의 글: 본 연구는 과학기술처 특정연구개발사업비로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

### 참고 문헌

1. J. N. Sultan and F. J. McGary, *Polymer. Eng. & Sci.*, **13** (1), 29 (1973).
2. C. K. Riew and J. K. Gillham, "Rubber Modified Thermoset Resins", *Advances in Chemistry Series #208*, American Chemical Society, Washington D.C., 1984.
3. C. B. Bucknall and A. H. Gilbert, *Polymer*, **30**, 213 (1989).
4. T. H. Yoon, D. B. Priddy Jr., G. D. Lyle, and J. E. McGrath, *Macromol. Sym.*, **98**, 673, (1995).
5. T. H. Yoon, S. C. Liptak, D. B. Priddy Jr., and J. E. McGrath, *Journal of Adhesion*, **45**, 191 (1994).
6. A. Cecere and J. E. McGrath, *Polymer Preprint*, **27**, 299 (1986).
7. J. L. Hedrick, I. Yilgor, M. Jurek, J. C. Hedrick, G. L. Wilkes, and J. E. McGrath, *Polymer*, **32**(11), 2020

- (1991).
8. Y. R. Park, I. Y. Park, T. H. Yoon, C. Tchatchua, and J. E. McGrath, *Adhesion Society Proceeding*, **18**, 249 (1996).
  9. Flammability, in "Encyclopedia of Polymer Science and Engineering", vol. 7, p. 154, John Wiley & Sons, New York, 1987.
  10. R. E. Lyon, *PMSE*, **77**, 26 (1994).
  11. S. J. Kim, *Polymer Science and Technology (Korea)*, **6** (2), 118 (1996).
  12. I. Y. Wan and J. E. McGrath, *Polymer Preprint.*, **36**(1), 493 (1995).
  13. C. D. Smith and J. E. McGrath, *SAMPE Proc.*, **35**, 108 (1990).
  14. S. J. Mecham and D. J. Riley, *Polymer Preprint*, **36**, 789 (1995).
  15. H. Yang, M. E. Roger, and J. E. McGrath, *PMSE*, **72**, 205 (1995).