

## 목분-PP 복합체의 난연성과 기계적 특성

손 원 근<sup>†</sup> · 황 택 성\*

충남대학교 고분자공학과, \*화학공학과  
(1998년 6월 26일 접수, 1998년 9월 28일 채택)

### The Flame Retardance and Mechanical Properties of Wood Powder-filled PP Composites

Won-Keun Son<sup>†</sup> and Taek-Sung Hwang\*

Department of Polymer Science & Engineering, Chungnam University, Taejeon 305-175, Korea

\*Department of Chemical Engineering, Chungnam University, Taejeon 305-175, Korea

(Received June 26, 1998; accepted September 28, 1998)

요 약: 본 연구에서는 표면이 개질된 목분으로 강화된 PP수지 복합체의  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 와 boron 혼합물( $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{H}_3\text{BO}_3 = 5 : 1$  ratio)에 대한 난연특성에 관해 알아보았다. 또한 m-phenylene dimaleimide(PDMI)로 개질된 PP수지와 비개질된 PP수지 복합체의 기계적 특성을 비교하였다.  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 로 개질된 복합체의 난연성은 boron 혼합물로 개질된 복합체의 난연성보다 우수하였다. 복합체의 충격강도는 목분의 함량이 증가함에 따라 증가되었고, 인장강도는 감소하였다. 개질된 PP수지 복합체의 기계적 강도는 비개질된 수지의 복합체보다 개선되었다. 또한 난연제의 농도가 증가함에 따라 인장강도는 점진적으로 증가되었고, 25 wt %에서 최대값을 나타내었으며, PDMI의 함량이 증가함에 따라 목분-PP 복합체의 인장강도는 16 wt %까지 증가되었다.

**Abstract:** Effects of  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$  and boron compounds ( $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{H}_3\text{BO}_3 = 5 : 1$  ratio) on the flame retarding characteristics of the surface modified wood powder-filled polypropylene composites were studied experimentally. The mechanical properties of m-phenylene dimaleimide(PDMI)-modified polypropylene composite were also compared with those of unmodified one. The flame retardance of  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ -modified wood powder composites was more improved than that of boron compounds-modified one. The impact strength of composites increased and the tensile strength of those decreased progressively with an increase of wood powder loading. The mechanical properties of modified polypropylene composites are more improved than those of unmodified one. The tensile strength also increased marginally with increasing the concentration of flame retardants, yielding a maximum when the concentration of flame retardant is 25.0 wt %. And the tensile strength of the composite was increased up to 16 wt % with increasing concentration of PDMI.

**Key words:** Thermoplastics, Polypropylene, Wood Composite, Flame Retardance.

## 1. 서 론

산업이 고도로 발전함에 따라 고분자의 수요가 급격히 증가하고 있으며 특히 건축 및 일반 생활용품에 널리 이용되고 있는 실정이다. 그러나 우리주변에서 사용되는 범용 플라스틱 (PE, PP, PS, ABS) 및 타이어 등의 고무류 등은 불에 잘 타고 발열량이 큰 수지이다[1-5].

일반적으로 플라스틱 제품에 관련된 화재 사고에 의한 인명 및 재산피해는 날로 증가되고 있으며, 전선 및 건축 내장재와 같은 플라스틱 제품에 의한 화재시 화염에 의한 피해보다는 맹독성 가스에 의한 인명 피해가 주를 이루고 있다. 이들 플라스틱 제품이 난연제품이라면 많은 재산과 인명을 보호할 수 있을 것이다.

고분자 첨가제중 플라스틱의 난연화에 사용되는 첨가제는 난연제 (flame retardants), 억연제 (smoke suppressant) 및 난연 상승작용제 (synergist) 등이 있다. 대부분의 플라스틱 제품은 다양한 난연제를 첨가하여 성능 평가 및 최적함량의 연구가 수행되고 있다 [6]. 플라스틱 제품들은 고분자의 화학구조에 산소 유무와 방향족

유무 등과 열분해 생성물의 종류에 따라 연소 정도가 달라진다. 그러므로 고분자의 난연화 방법에는 분자구조의 설계를 통한 열적으로 안정한 수지를 합성하거나 기존 고분자의 반응형 난연제를 통한 화학적 개량의 방법이 있고, 난연제의 블렌딩 또는 컴파운딩을 통한 물리적 첨가와 코팅 또는 페인팅 방법 등으로 난연화하고 있다.

이들 중 열가소성 고분자에 할로겐계, 인계, 질소계, 무기계 난연제의 블렌딩 또는 컴파운딩 방법이 플라스틱제품의 난연화에 많이 이용되고 있다. 이와 같은 첨가형 난연제를 작용기구에 따라 구분하면 첫째로 분해 및 연소반응시 불연기체 또는 무거운 기체를 생성하여 산소전달을 방해하고 라디칼과의 연쇄반응을 방해하여 소화시키는 난연제가 있다. 둘째로 연소열을 줄이는 분해 및 연소 반응으로 유도하는 화합물로서 char를 형성시켜 carbon dioxide 생성을 막아 열 발생을 줄인다. 형성된 char (생성열이 0에 가까움)는 carbon monoxide (26,400 cal/g mol)와 carbon dioxide (94,000 cal/g mol)의 생성을 막아 그 만큼의 연소열 발생을 막고 또한 산소의 접근을 차단하며 연기 및 독가스 발생을 억제하는 역할 등을 수행한다. 셋째로 재료의 물리적 형상을 유지시키는 동시에 산소와 열의 접근을 차단시키는 것으로 무기물 충전제가 여기에 속하며 고체 잔류물로 남게된다. 이와 같은 고체 잔류물은 열과 산소를 차단시키게 된다. 넷째로 재료의 비열이나 열전도도를 크게 증가시켜

<sup>†</sup> 주 저자 (e-mail: wkson@hanbat.chungnam.ac.kr)

연소과정의 heating 단계를 방해하는 것으로 high density filler와 무기수화물 등이 여기에 속한다. 삼수산화 알루미늄과 수산화마그네슘은 300 °C 이상에서 물을 뿜어 탈수와 증발잠열로 온도를 감소시켜 소화시킨다. 특히 다량 첨가되는 무기계 난연제와 filler들은 가연성 플라스틱의 양을 상대적으로 감소시키는 희석제 역할을 한다. 그러나 일부 할로겐계 난연제는 고온가공 또는 연소시 부식성이 큰 다량의 할로겐화수소를 생성시킬 뿐만 아니라 산소가 없는 조건하에서 연소시킬 경우 인체에 매우 해로운 맹독성의 발암물질인 할로겐화 디옥신(dioxin)과 퓨란(furan)을 생성함으로 사용을 제한하고 있다[7].

최근 polyethylene이나 polypropylene 같은 maleated polyolefin들은 목분이나 무기 충전제에 상용성이 있기 때문에 복합체를 만드는 데 많이 이용되고 있다[8-11]. 그러나 이들 복합체는 미반응의 peroxide나 free maleic anhydride가 존재하게 되면 180 °C 이상의 가공 온도 중에 목분의 열분해를 촉진하게 되어 가공성 및 기계적 성질에 결함의 요인으로 작용하게 된다. Han 등은 MgO가 목분-PP 복합체를 가공할 때 목분의 분해를 억제하고, Mg(OH)<sub>2</sub>를 생성하여 복합체의 난연성을 부여한다고 보고한 바 있다[12].

그러므로 본 연구에서는 목분과 PP (polypropylene)을 이용하여 목분의 함량에 따른 복합체를 제조하여 이들의 기계적 성질 및 난연성을 알아보았다. 이때 목분은 ammonium hydrogenphosphate ((NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>), sodium tetraborate (Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: borax)와 boric acid (H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>) 등의 난연성 개질제로 처리하였고, PP는 1,4-phenylene dimaleimide로 처리한 후 복합체를 제조하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 실험재료

실험에 사용된 PP수지는 호남석유화학(주)의 Y-110으로 용융지수 (melt index)가 10이고, 밀도는 0.90 (g/cm<sup>3</sup>)인 수지를 사용하였으며, 목분은 호주산 침엽수 W/F-600로 10~1000 μm의 입도분포를 갖는 침상구조의 목분을 사용하였다. 난연성 개질제로서 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>, Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>와 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>는 Junsei Co.의 특급 시약급을 그대로 사용하였으며, PP의 개질제인 1,4-phenylene dimaleimide (PDMI)는 미국의 Pennalt Co. 특급시약을 그대로 사용하였다. PP 수지 개질의 촉매로 Dicumyl peroxide (DPO)와 그밖의 시약은 일급 내지 특급시약을 그대로 사용하였다.

### 2.2. 혼합공정

목분과 수지의 혼합공정은 성형공정의 전단계로서 성형제품의 품질에 중요한 영향을 주는 공정이다. 따라서 성형공정은 복합체의 성형제품의 품질을 좌우할 뿐만 아니라 배합조건에 따라 기계적 성질이 영향을 받는다. 그러므로 본 연구에서의 일정량의 목분과 개질된 PP를 혼합하기 위해 two-roll mill을 사용하였고, 이때 혼합속도는 20 rpm 유지하고 온도는 PP가 녹을 수 있는 180~185 °C를 유지하면서 충분히 혼합될 수 있도록 약 20분간 진행하였다.

### 2.3. 목분과 PP의 개질

목분의 개질은 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> 25%의 수용액 1 L에 목분 15 g을 20 mmHg로 감압 침적시키고, 교반하면서 150 °C에서 12시간 반응시켜 filtering한 후 60 °C에서 24시간 진공 건조하였다. 또한 Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>와 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 비율이 5:1이 되는 boron 화합물 25% 수용액 1 L에 목분을 15 g을 20 mmHg로 감압 침적시켜 상온에서 반응시킨 후 filtering하여 60 °C에서 24시간 진공 건조하였다. 그리고 개질된 PP는 16 wt %의 PDMI와 2 wt % DPO를 촉매로 사용하여 140 °C에서 3시간 동안 반응시켜 제조하였다.

### 2.4. 시편제작

혼합공정에서 얻어진 시료가 3~4 mm의 두께를 갖도록 냉압한 후 1.5 mm 정도 두께의 간격을 갖는 spacer를 사이에 놓고 compressing molding을 할 수 있도록 적당한 크기 (10×10 cm)로 절단하였다. 그리고 상·하의 스테인레스판 사이의 spacer에 적당한 크기로 절단된 시료를 넣고, 200 °C에서 3.5 MPa의 압력으로 5분간 유지한 후 복합판넬의 뒤틀림을 방지하기 위해 molding을 10분간 압력하에서 냉각하였다.

### 2.5. 기계적 성질 및 난연성 시험

복합체의 충격강도는 ASTM-D256에 의해 무노치 방법으로 Tinius Toolsen Co.의 Plastic Impact tester를 이용하여 측정하였다. 그리고 인장강도와 굴곡강도는 ASTM-D638에 의하여 Instron Co.의 Universal Test Machine (UTM)을 이용하여 측정하였다. 이때 cross head speed는 1.5 mm/min로 하여 측정하였다. Young's modulus (E)는 원점을 기준으로 stress-strain 곡선의 기울기를 통하여 측정하였고, tensile toughness는 stress-strain 곡선의 면적으로부터 측정하였다.

가연성 실험은 ASTM-D635~63의 측정 방법에 따라 이루어졌으며, 시편의 크기는 대략 길이 152 mm, 넓이 12.5 mm, 두께 1.5 mm 정도의 크기였다. 이때 연소속도 (mm/min)로 표시하는데 시편이 127 mm까지 연소되었을 때 시간을 측정하여 나타내었다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 복합체의 난연효과

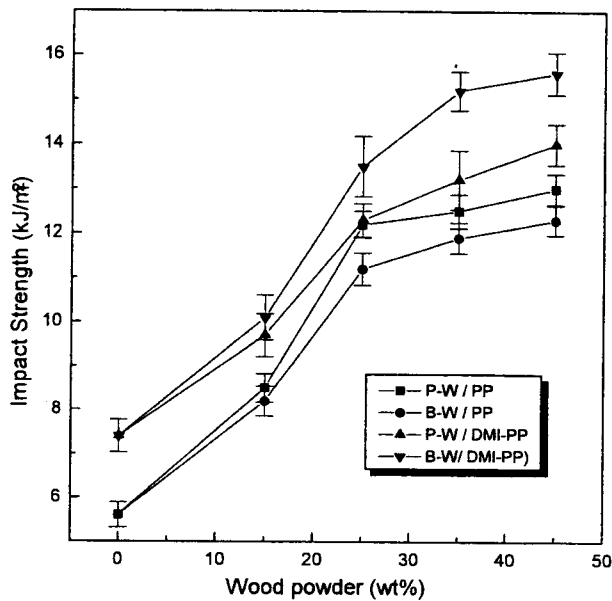
열가소성 수지에 유기물 충전제로서 wood fiber를 사용하여 복합체를 제조할 때 molding이나 압출 가공과정중 wood fiber가 약 170~200 °C에서 열분해 되기 때문에 가공이 어려운 단점을 가지고 있다. 목분에는 resin acid와 hydrolysable acetyl group들이 존재하기 때문에 열분해에 의해 산성물질이나 tar와 같은 물질을 만들게 된다[13]. 또한 wood fiber를 사용하여 PP복합체를 제조할 때 급속성 mold나 가공기계를 부식시키는 단점을 가지고 있다.

(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>과 boron 혼합물 (Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> = 5:1 ratio)로 wood fiber를 전처리하는 것은 복합체의 재조공정 중에 발생하는 단점을 막기 위해 고려된 것이다. (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>는 pH 8의 약염기성을 가지며, 흔히 난연제로 많이 사용되고 있다[14]. 그러므로 wood fiber의 열분해시 발생하는 산성물질을 어느 정도 중화할 통한 장치의 부식을 막으며, wood fiber의 복합체의 가공온도를 증가시키는 것으로 생각된다. Boric acid와 borax는 낮은 온도에서 용융되는 물질로 filler의 표면에 유리상 열안정성 필름을 형성하여 부분적으로 wood fiber의 분해를 방지할 뿐만 아니라 190 °C 이상의 가공 온도에서 복합체의 wood fiber의 변색을 방지하는 완충제 역할을 하는 것으로 믿어지고 있다[15]. 또한 borax의 낮은 염기성은 wood fiber의 열분해시 발생하는 산성의 생성물을 부분적으로 중화시켜 장치의 부식을 감소시킬 뿐만 아니라 계의 잔류의 boron 화합물들은 PP와 wood fiber 복합체의 인화온도 근처에서 난연제로 작용하는 것으로 생각된다.

(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>나 boron 화합물로 처리된 목분의 함량에 따른 순수한 PP 복합체의 가연성 측정 결과를 Table 1에 나타내었다. Table에서 보는 바와 같이 순수한 PP에 비해 목분의 함량이 증가함에 따라 가연성이 감소하는 것을 알 수 있다. 또한 boron화합물로 처리했을 때 보다 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>로 처리하였을 경우 더욱 난연성이 우수한 것을 알 수 있다.

**Table 1.** Flammabilities of PP Composites Depending on the Modified Wood Powder Concentration

Flammability	PP	Composite/wood powder content (wt %)							
		$(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$				Borax			
		15	25	35	45	15	25	35	45
Rating	B	B	B	B	B	B	B	B	B
Burning rate (mm/min)	71	42	35	32	28	53	39	36	31
Thickness (mm)	1.51	1.53	1.51	1.49	1.50	1.54	1.52	1.52	1.50



**Figure 1.** The impact strength of the composites depending on various wood powder concentrations of composites.

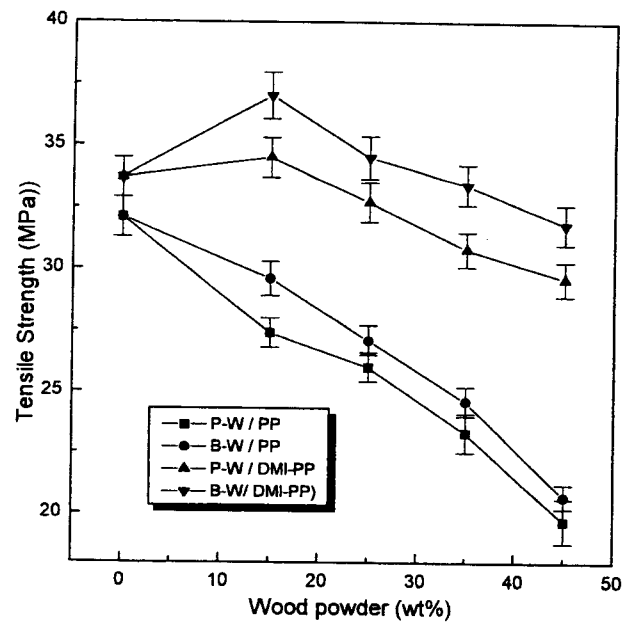
3.2. 복합체의 기계적 특성

PDMI로 개질되었거나 개질되지 않은 PP수지와  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 나 boron 혼합물로 개질된 목분 복합체의 기계적 성질을 Figure 1~4에 나타내었다. 복합체는 목분의 함량에 따라 기계적 물성들이 변화하는 것을 알 수 있다.

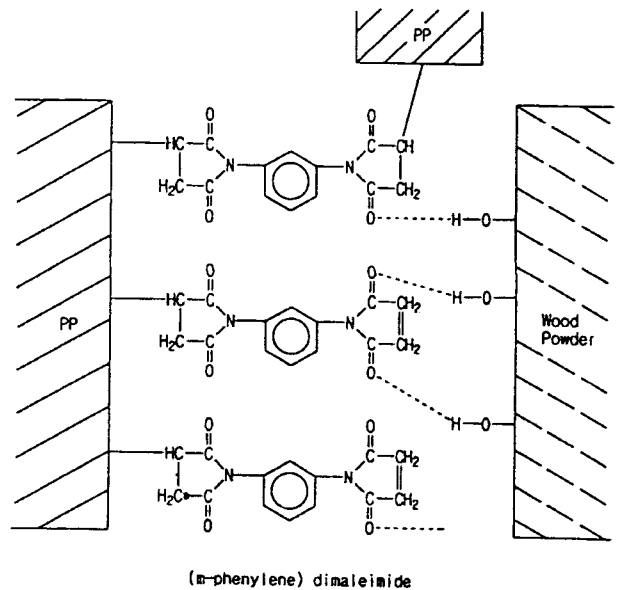
Figure 1에서 보는 바와 같이 목분의 함량이 증가함에 따라 충격강도는 증가되는 것을 알 수 있으며, PDMI로 개질된 PP복합체가 순수한 PP수지보다 충격강도가 높은 것을 알 수 있다. 최근 PDMI로 처리된 polyolefin계 수지는 wood fiber 복합체에서 상용성을 좋게 하기 때문에 wood fiber/열가소성수지 복합체의 연구에 많이 사용되고 있다[8-12]. 개질된 PP수지가 비개질된 PP수지보다 목분과의 상용성이 좋기 때문에 matrix가 목분을 충분히 wetting시켜 목분과 수지사이의 상호결합력이 증가되어 충격강도가 증가되는 것으로 생각된다.

Figure 2에서 보는 바와 같이 목분의 함량이 증가함에 따라 인장강도는 감소하는 것을 알 수 있다. 개질된 PP수지는 목분의 함량이 낮을 때 인장강도가 증가하는 것을 알 수 있으며, 전반적으로 순수한 수지보다 높은 인장강도를 가짐을 알 수 있다. A. Y. Coran[16]과 A. Ruvo[17] 등은 PDMI가 190 °C 이상에서 개시제 없이도 반응한다고 보고한 바 있다.

그러므로 이는 Scheme 1에 나타낸 바와 같이 개질된 PP의 PDMI가 가공공정 중에 PP수지와 grafting반응의 가능성을 나타낸



**Figure 2.** The tensile strength of the composites depending on wood powder concentrations of composites.



**Scheme 1.** Hypothetical chemical structure of wood powder and PDMI modified PP in the interfacial region.

다. 또한 M. M. Sain 등은 bismaleimide로 개질처리한 PP와 cellulose의 복합체에서 cellulose의 -OH groups과 bismaleimide의 산소와 수소결합을 하기 때문에 기계적 강도가 증가한다고 보고한 바 있다[18]. 이들의 결과와 마찬가지로 목분의 -OH groups들과 PDMI의 산소와 수소결합을 형성하기 때문에 인장강도가 증가하는 것으로 생각된다. Figure 3과 4에서 보는 바와 같이 Young's modulus는 목분의 함량이 증가함에 따라 증가를 나타냈고, tensile toughness는 감소를 나타내었다. 이는 목분의 함량이 증가함에 따라 인장강도의 감소에 비해 신장율이 더 작기 때문에 Young's modulus는 증가되고 tensile toughness는 감소하는 것으로 생각된다.

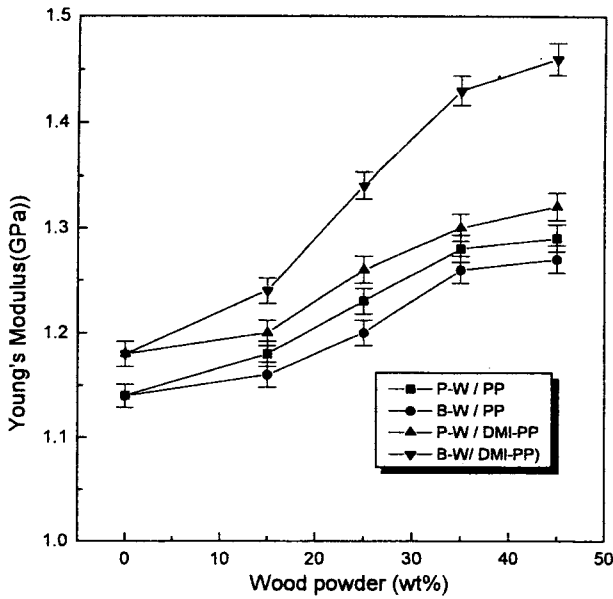


Figure 3. The Young's modulus of the composites depending on the wood powder concentrations of composites.

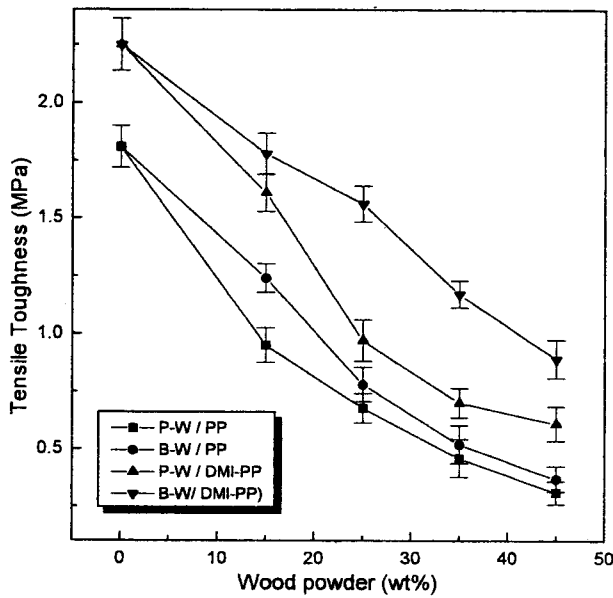


Figure 4. The tensile toughness of the composites depending on the wood powder concentrations of composites.

### 3.3. 난연제의 함량에 따른 인장강도

목분 25 wt %가 충전된 복합체에 대한  $(NH_4)_2HPO_4$ 나 boron 혼합물의 농도에 따른 인장강도의 변화를 Figure 5에 나타내었다. 그림에서 보는바와 같이  $(NH_4)_2HPO_4$ 나 boron 혼합물의 농도가 증가함에 따라 인장강도가 약간씩 증가하는 것을 알 수 있으며, 25 wt % 수용액에서 가장 큰 값을 가짐을 알 수 있다. 이와 같은 강도의 증가에 대한 이유는 알려져 있지 않았으나 cellulosic fiber들에 있어서 boron 혼합물을 난연제로 사용하였을 때 인장강도가 증가된다고 M. M. Sain가 보고한 바 있다[18]. 이들의 보고에 의하면 boric acid와 borax는 낮은 온도에서 용융되는 물질로 cellulosic fiber의 표면에 glassy heat resistance film을 형성하여 가공과정중 cellulosic fiber의 분해를 방지하기 때문에 기계적 강도가 증가되는

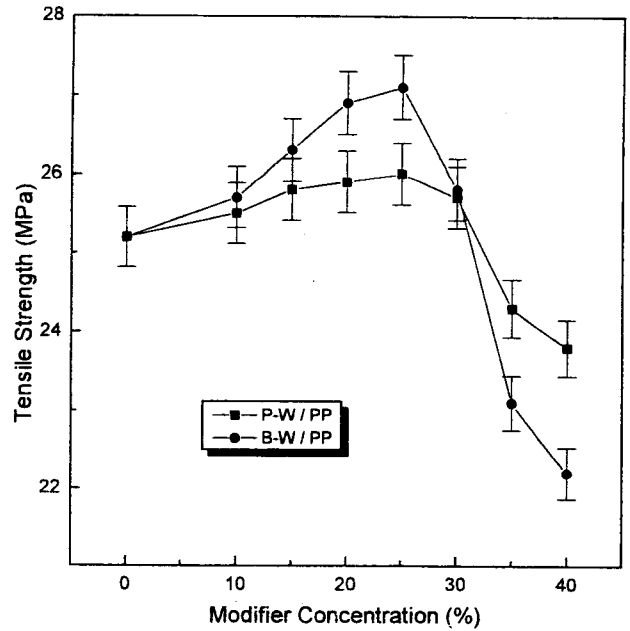


Figure 5. Variation of the tensile strength with the concentration of flame retardant for 25/75 (weight ratio) wood powder/PP composites.

것으로 설명하고 있다. 또한 이들은 복합체의 기계적 강도의 증가는 boric acid와 borax에 의해 증가된 것 보다는 복합체의 열안정성의 증가에 기인된 것으로 결론짓고 있다. 그러므로 25 wt % 이하에서는 복합체의 열 안정성을 증가시켜 목분의 열분해를 방지함으로써 기계적 강도가 증가되는 것으로 생각되며, 이상에서는 이들의 과량의 잔류물들이 glassy의 물질의 형태로 잔존하기 때문에 결합의 요인으로 작용하여 인장강도가 감소되는 것으로 생각된다.

### 3.4. PDMI의 함량에 따른 인장강도

목분 25 wt %가 충전된 복합체에서 PP의 개질제인 PDMI의 농도에 따른 인장강도의 변화를 Figure 6에 나타내었다. 그림에서 보는바와 같이 PDMI의 농도가 증가함에 따라 인장강도가 크게 증가하는 것을 알 수 있으며, PDMI의 16 wt %에서 가장 큰 값을 가짐을 알 수 있다. 순수한 PP수지와  $(NH_4)_2HPO_4$ 나 boron 혼합물로 처리된 목분 복합체의 인장강도는 각각 26.0과 27.1 MPa이었으나, 16 wt %의 PDMI로 개질된 PP수지 복합체는 각각 32.7과 34.5 MPa이었다. 그러므로 비개질된 PP수지보다 각각 25.8%와 27.3%의 인장강도 증가를 나타내었다. 이는 앞에서 설명한 바와 같이 PDMI가 PP수지의 grafting과 수소결합에 기인되어 인장강도가 증가되는 것으로 생각된다.

## 3. 결 론

본 연구에서는  $(NH_4)_2HPO_4$ 나 boron 혼합물로 처리된 목분과 순수한 PP와 PDMI로 개질된 PP수지 복합체를 목분의 함량에 따른 기계적 성질 및 난연성을 알아보았다. 그리고 목분의 개질제 및 PDMI의 함량에 따른 최적조건을 알아본 결론은 다음과 같다.

- 1) 순수한 PP에 비해  $(NH_4)_2HPO_4$ 나 boron 화합물로 처리된 목분의 함량이 증가함에 따라 가연성이 감소하였다.
- 2) boron화합물로 처리했을 때보다  $(NH_4)_2HPO_4$ 로 처리하였을 경우 더욱 난연성이 우수한 것을 알 수 있다.

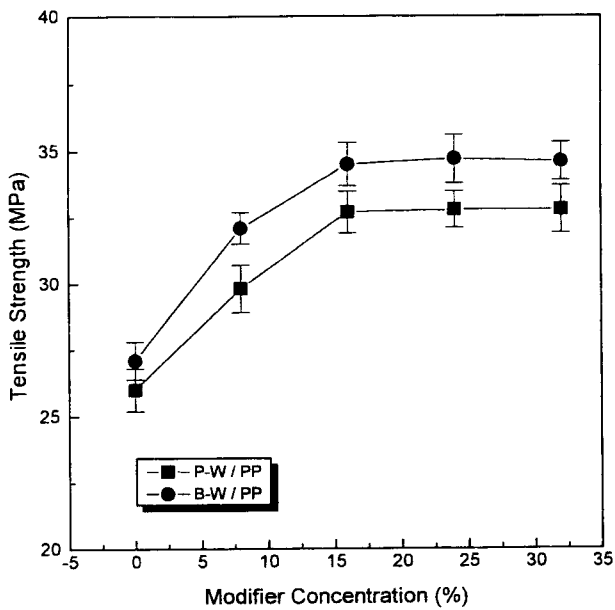


Figure 6. Variation of the tensile strength with the concentration of PDMI for 25/75 (weight ratio) wood powder/PP composites.

3) 개질제로 처리된 목분의 함량이 증가함에 따라 충격강도가 증가되는 것을 알 수 있으며, PDMI로 개질된 PP복합체가 순수한 PP수지보다 충격강도가 높았다.

4) 목분의 함량이 증가함에 따라 인장강도는 감소하나 개질된 PP수지가 순수한 수지보다 높은 인장강도를 가졌다.

5) Young's modulus는 목분의 함량이 증가함에 따라 증가하였고, tensile toughness는 감소하였다.

6)  $(NH_4)_2HPO_4$ 나 boron 혼합물의 농도가 증가함에 따라 25 wt %까지는 인장강도가 약간씩 증가하였으며, 그 이상에서는 급격히 감소하였다.

7) PDMI의 농도가 증가함에 따라 16 wt %까지는 인장강도가 증가하는 것을 알 수 있으며, 그 이상에서는 거의 증가하지 않았다.

## 참고 문헌

1. S. Ishihara, *J. Soc. Mat. Sci.(Japan)*, **43**, 486, 297(1994).
2. T. C. Triantfillou and N. Deskovic, *J. Struct. Eng.*, **118**, 1270(1992).
3. C. J. Hilado, "Flamability Handbook for Plastics", 4th ed., Technomic Publishing Co., Penvsylvania(1990).
4. J. Green, Ch. 4 in "Thermoplastic Polymer Additives", ed. by J. T. Lutz, Jr., Marcel Dekker, N. Y.(1989).
5. N. Hidori, "ポリマーの難燃化", 大成社, 東京(1979).
6. M. Lewin, S. M. Altas, and E. M. Pearce, "Flame-Retardant Polymer Materials", Plenum Press, N. Y.(1975).
7. S. J. Kim, *Polym. Sci. & Techn.*, **6**, 2, 118(1995).
8. J. K. Rogers, *Mod. Plast.*, **67**, 66(1990).
9. A. S. Wood, *Mod. Plast.*, **68**, 50(1991).
10. R. G. Raj, B. V. Kokta, and C. Daneault, *Int. J. Polym. Mater.*, **15**, 239(1989).
11. D. Maldas and B. V. Kokta, *J. Appl. Polym. Sci.*, **40**, 917 (1990).
12. H. Kishi, M. Yoshioka, A. Yamanoi, and N. Shiraiishi, *Mokuzai Gakkaishi*, **34**, 133(1988).
13. G. E. Myers, I. S. Chahya, C. A. Coberly, and D. S. Ermer, *Int. J. Polym. Mater.*, **15**, 21(1991).
14. J. Green, *Plastics Compounding*, **10**, 3, 57(1987).
15. L. G. Sellman, B. A. L. Ostman, and E. C. Back, *Fire Mater.*, **1**, 85(1970).
16. M. M. Sain, J. Oravec, J. Lacok, and J. Beniska, *Acta Polymerica*, **40**, 648(1989).
17. A. Y. Coran, R. P. Patel, and D. William, *Rubber Chem. Technol.*, **55**, 116(1982).
18. M. M. Sain, B. V. Kokta, and D. Maldas, *J. Adhesion Sci. Technol.*, **7**, 1, 49(1993).