

실리콘 변성 에폭시 언더코팅액 물성 연구

김진경 · 황희남* · 강두환 · 강호종[†]

광 에너지 소재 연구센터, 단국대학교 고분자시스템공학과, *아이컴포넌트
(2014년 1월 4일 접수, 2014년 2월 11일 수정, 2014년 2월 11일 채택)

Physical Characteristics of Silicone Modified Epoxy as a Undercoating Materials

Jin Kyung Kim, Hee Nam Hwang*, Doo Whan Kang, and Ho-Jong Kang[†]

Center for Photofunctional Energy Materials, Dept. of Polymer Science and Engineering, Dankook University,
126 Jukjeon-dong, Sugi-ku, Yongin-si, Gyeonggi-do 448-160, Korea

*I Component Corp., 390-2 Chupal-ri, Paengseong-eup, Pyeongtaek-si, Gyeonggi-do 451-805, Korea

(Received January 4, 2014; Revised February 11, 2014; Accepted February 11, 2014)

초록: Polydimethylsiloxane(PDMS)을 이용한 실리콘 변성 에폭시(PDMSME) 언더코팅액의 변성 조건이 코팅 도막 물성에 미치는 영향을 살펴보았다. 실리콘 변성 에폭시 언더코팅 도막은 에폭시 코팅 도막에 비하여 월등히 우수한 휨성을 가지며 경도는 PDMS에 결합된 실란 커플링제에 의해 개환된 에폭시 링의 개수와 밀접한 관계를 가짐을 알 수 있었다. PDMS에 결합된 개환된 에폭시 링의 개수가 증가함에 따라 대기 중의 수분과의 수소가교에 의한 가교밀도 증가에 의하여 경도가 증가되며 사용된 PDMS의 탄성적 성질에 의하여 휨성 또한 우수해짐을 알 수 있었다. PDMS 분자량이 증가됨에 따라 코팅 도막의 경도는 낮아지는 반면 실리콘의 함량 증가에 따른 표면 접촉각이 증가됨을 알 수 있었다. 이와 함께 PDMS의 분자량이 증가됨에 따라 아세톤 용액에 의한 PDMSME 주사슬의 entanglement 감소에 의하여 코팅액의 점도가 감소되며 그 결과, 언더코팅 도막의 표면 거칠기가 감소됨을 알 수 있었다.

Abstract: The effect of modification conditions on the physical properties of polydimethyl siloxane modified epoxy (PDMSME) was investigated. The number of ring opened epoxy attached to polydimethylsiloxane (PDMS) by silane coupling agent affected the physical properties of undercoating materials. The flexibility of thin coating was enhanced by PDMSME and the increase of ring opened epoxy attached to PDMS resulted in the increase of hardness by the crosslinking in the present with moisture. The higher molecular weight of PDMS caused the lowering of hardness while the surface contact angle increased due to the high silicone content in PDMS. The viscosity of silicone modified epoxy coating materials decreased with increasing of molecular weight of PDMS due to the lowering of entanglement of PDMSME molecules by acetone solvent and consequently, the smooth undercoated surface was obtained.

Keywords: epoxy coating materials, polydimethylsiloxane, hardness, flexibility, surface contact angle.

서 론

OLED(organic light emitting diode)를 이용한 디스플레이 개발이 활성화됨에 따라 유기소재 특성을 갖는 OLED의 유연성을 이용한 플렉시블 디스플레이에 대한 연구가^{1,2} 활발히 진행되고 있다. 디스플레이가 유연성을 갖기 위해서는 현재 기판으로 사용되고 있는 유리 기판을 대체할 수 있는 고분자 유연기판 소재의 개발이 필수적이다. 유리기판과 비교하여 고분자 유연기판은 유기소재가 필연적으로 갖는 취약한 치수안정성이라는 문제점을 갖는다. 따라서 이의 개선에 대한 연구

가³⁻⁵ 활발하게 진행되고 있다.

고분자 유연기판의 치수안정성을 증가시키는 방법으로는 낮은 치수안정성을 갖는 새로운 유연기판 고분자 소재를 개발하거나⁶ 기판 가공 시 연신 및 열처리와 같은 기판 가공 조건을 조절해 주는 방법⁷⁻¹¹ 그리고 유리 섬유, 유리 비드와 같은 무기필러 첨가에 의한 치수안정성 향상에 대한 연구가¹²⁻¹⁶ 진행되고 있다. 이 중 무기필러의 첨가는 다양한 고분자 소재에 우수한 치수안정성을 부여할 수 있다는 장점을 가지고 있어 활발하게 연구가 진행되고 있으며 특히 유리섬유로 이루어진 유리 메쉬를 에폭시 소재에 함침시킴으로 유리 기판과 거의 유사한 치수안정성을 얻을 수 있다는 연구가¹⁷ 보고되어 지고 있다.

유리 메쉬를 에폭시에 함침시키는 경우 유리 메쉬에 의하

[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: hjkang@dku.edu

여 기관 표면의 평활도가 현저히 나빠짐이 확인됨에 따라 이의 개선을 위하여 기관 표면에 언더코팅이 요구된다. 하지만, 기관과 같은 에폭시 소재의 언더코팅을 사용하는 경우 기관과 접착성은 우수한 반면 얇은 박막 코팅에 따라 응력에 의하여 크랙이 발생함이 예측된다. 따라서 기관과 접착성이 우수하며 언더코팅 후 크랙 발생을 최소화될 수 있는 수가교형 실리콘 변성 에폭시 코팅액이 개발된 바 있다.¹⁸ 수가교 반응은 상온에서 polyamide계 경화제나 지방족 amine 및 amine 변성 경화제에 의해 에폭시 링이 대기 중의 수분과 만나 수가교가 진행된다.¹⁹⁻²¹

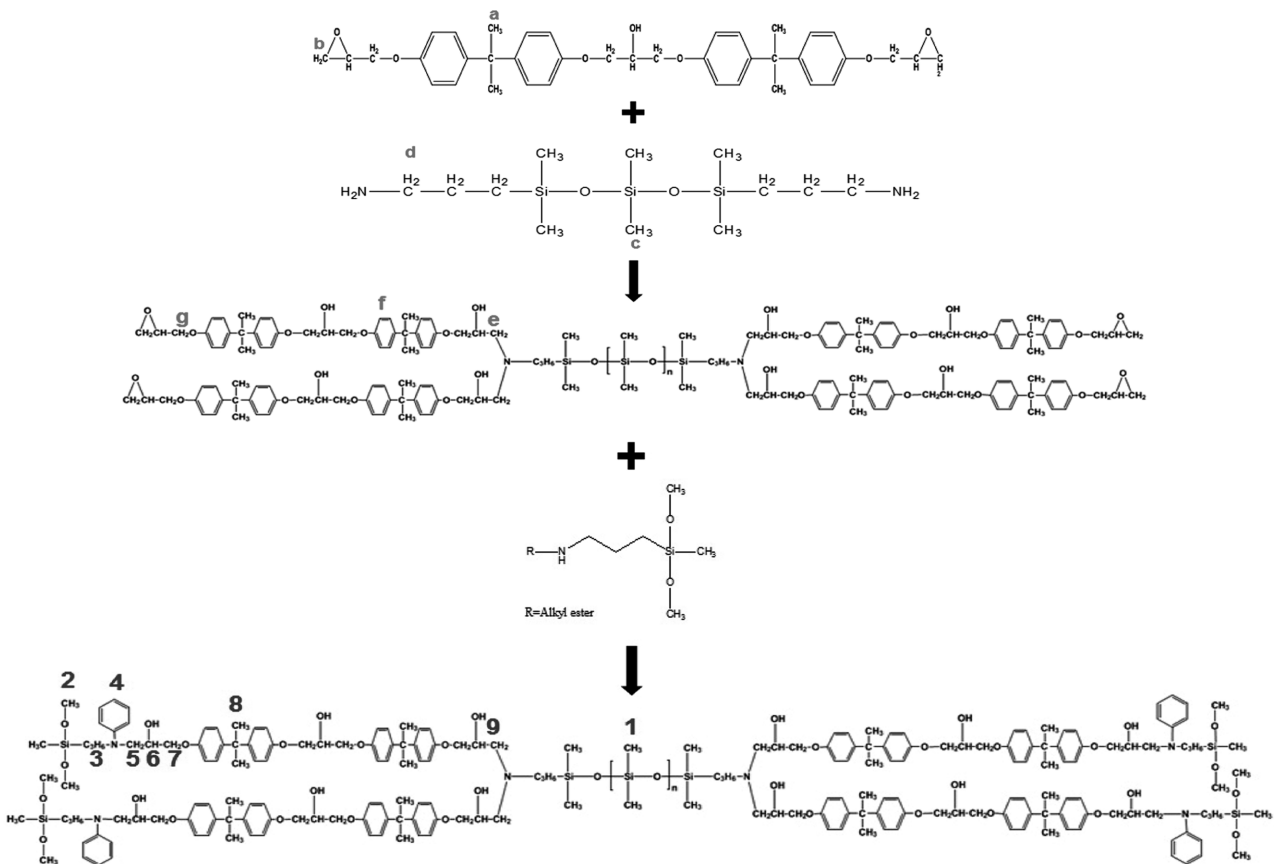
본 연구에서는 변성 반응조건과 실란 커플링제의 반응에 따라 PDMS에 결합된 개환된 에폭시 링의 개수와 같은 변성 에폭시 수지의 화학적 구조가 언더코팅 도막의 물성 즉, 표면경도, 휨성, 표면 거칠기, 표면 접촉각, 광 투과도에 미치는 영향을 중점적으로 살펴보았다.

실 험

국도화학의 bisphenol-A형의 에폭시 수지(YD-134, EEW: 240~270)와 분자량이 1000, 3000, 5000인 aminopropyl

terminated polydimethylsiloxane(DMS-A12, DMS-A15, DMS-A21, Gelest Inc.)을 사용하여 전 연구의¹⁸ 변성 방법에 의하여 측정된 에폭시 수지의 EEW에 따라 에폭시와 aminopropyl terminated polydimethylsiloxane 반응비를 조절하여 24-72시간 반응시켜 실리콘 변성 에폭시 수지(PDMSME)를 합성하고 아세톤(Duksan Co.) 10 mL에 용해시킨 다음 50 mL의 증류수를 적가하여 침전시켜 미반응물을 제거하였으며 침전 생성물을 상온에서 24시간 동안 진공 건조하여 정제된 PDMSME를 얻었다. 이를 아세톤에 30 wt% 녹여 실란 커플링제인 N-[3-(tri-methoxysilyl)propyl]amino alkyl ester(XD 5607, Damipolychem Co.)를 첨가 후 3~48시간 반응시켜 언더코팅액을 제조하였다. Scheme 1에 사용된 에폭시, PDMS, PDMSME, 실란 커플링제 그리고 실리콘 변성 에폭시 코팅액의 화학식과 이들의 반응 메커니즘을 나타내었다.

변성 반응시간에 따라 얻어진 실리콘 변성 에폭시 수지와 실란 커플링제 첨가에 의하여 얻어진 언더코팅 수지의 화학적 구조를 확인하기 위하여 ZEOL사의 400 MHz NMR (ZEOL400)을 이용하여 얻어진 코팅액을 CDCl₃ 용매에 용해시켜 실온에서 ¹H NMR를 측정하였다. 0.1 ppm의 PDMS의 -CH₃에 기인된 H 피크(c)와 2.6 ppm의 에폭시 링의 -CH₂에



Scheme 1. Modification mechanism and chemical structure of silicone modified epoxy coating material.

기인된 H 피크(b)의 면적을 상대 비교하여 PDMS에 결합된 에폭시 수지의 개수를 확인하였다. 이와 함께 0.1 ppm의 PDMS의 -CH₃에 기인된 H 피크(1)와 2.9 ppm의 에폭시 링 개환에 의해 생긴 -CH₂에 기인된 H 피크(9)를 비교하여 첨가된 실란 커플링제에 의하여 개환된 에폭시 링의 개수를 계산하였다.

얻어진 실리콘 변성 에폭시 코팅액의 점도는 cup and bob 이 장착된 TA사 회전점도계(Rheometer, AR-2000EX)를 이용하여 측정하였으며 코팅액을 #9 wire bar를 이용하여 PET 필름(SKCS사, 두께 188 μm) 위에 코팅한 후 상온에서 24시간 동안 경화시켜 실리콘 변성 에폭시 수지로 5 μm 언더코팅된 PET 필름을 얻었다.

코팅 도막의 물성 즉, 표면경도, 휨성, 표면 접촉각, 표면 거칠기, 광 투과도를 측정하였다. 표면경도는 45°의 팁을 갖는 스텐레스 봉이 장착된 Core Tech사 연필 경도계(pencil hardness tester, CT-PC2)를 이용하여 750 g의 하중 아래 긁혀진 깊이(scratch depth)를 얻어 나타내었다. 접촉각은 SEO사 접촉각 측정기(contact angle analyzer, PHOENIX 300)를 이용하여 증류수를 기준물질로 측정하였다. 휨성은 실리콘 변성 에폭시 수지가 코팅된 PET 필름 직경이 5~15 mm 봉에 감아 크랙의 발생 유무를 관찰하여 나타내었다. 코팅 표면의 표면 거칠기 측정은 VEECO Instrument사의 박막 두께 측정기(Surface Profiler, D150)를 이용하여 측정하였다. 광 투과도 및 haze 측정은 Perkin-Elmer사의 UV-Vis(LAMBDA 950)를 이용하여 파장범위 250~800 nm까지 측정하였다.

결과 및 토론

Figure 1에 에폭시 수지, PDMS 그리고 에폭시가 PDMS 양 말단에 결합된 실리콘 변성 에폭시 수지(PDMSME)의 반응시간에 따른 ¹H NMR 스펙트럼을 나타내었다. 에폭시 수지의 경우, 1.7 ppm의 bisphenol-A의 -CH₃에 기인된 H 피크(a)와 2.6 ppm의 에폭시 링의 -CH₂에 기인된 H 피크(b)를 확인할 수 있었으며 PDMS의 경우, 0.1 ppm의 -CH₃의 H 피크(c)에 기인된 피크와 2.65 ppm의 말단 -CH₂N-의 H 피크(d)를 확인할 수 있었다. 실리콘 변성 에폭시 수지의 경우, 이들 피크 이외에도 2.9 ppm에서 에폭시 링의 개환에 의하여 PDMS 말단에 -N(CH₂)₂-에 기인된 H 피크(e)를 확인할 수 있다. 따라서 이와 PDMS의 -CH₃의 H 피크 면적을 상대 비교하여 PDMS에 결합된 에폭시 수지의 개수를 확인하여 Figure 2에 반응시간에 따라 나타내었다. 24시간 이하에서는 에폭시 수지가 PDMS에 결합되지 않음이 확인되었으며 24시간 이후, 에폭시 수지가 PDMS에 결합 가능한 최대 이론적 개수가 4이나(Scheme 1) 그림에서 확인된 바와 같이 24~72시간 반응에 의하여 2.9~3.2개로 확인됨에 따라 본 연구의 PDMS와 에폭시 반응비에 의한 변성 반응 조건에서 에폭시가 PDMS

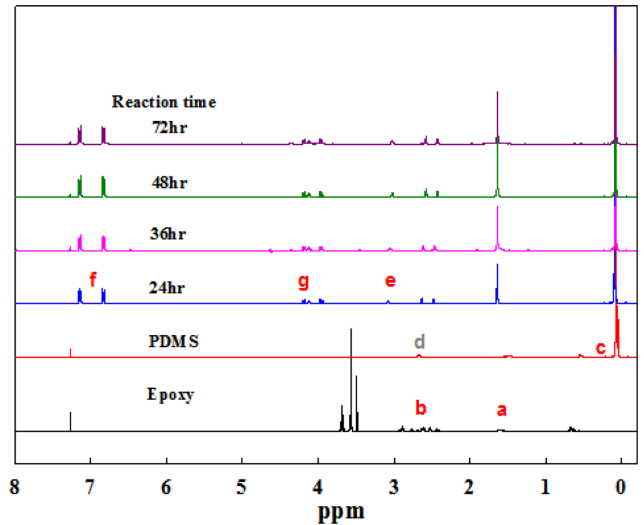


Figure 1. ¹H NMR spectrum of PDMSME as a function of reaction time.

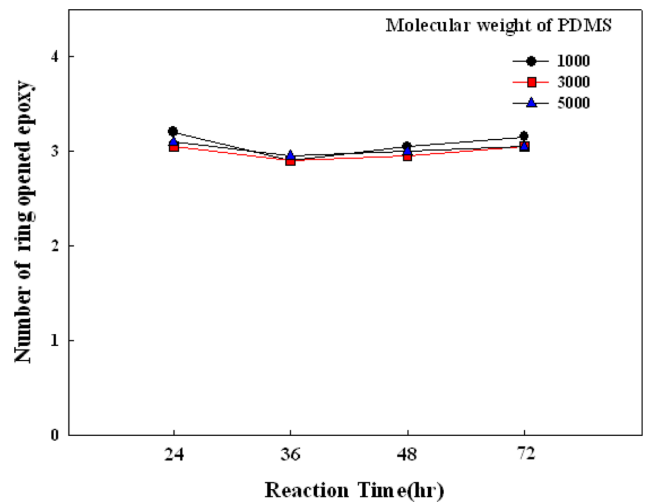


Figure 2. Effect of reaction time on the number of epoxy substitution in PDMSME.

양 말단에 완벽하게 결합되지 못함을 알 수 있다. Figure 2에 PDMS 분자량이 PDMS에 결합된 에폭시 개수에 미치는 영향을 함께 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 PDMS의 분자량은 결합된 에폭시 개수에는 크게 영향을 미치지 않음을 알 수 있다.

Figure 3에 PDMSME를 아세톤 용액에서 3~48시간 동안 실란 커플링제와 반응시켜 PDMSME의 양 말단에 에폭시 링이 개환된 실리콘 변성 에폭시 코팅액의 ¹H NMR을 반응시간에 따라 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 3.5 ppm에서 실란 커플링제의 -CH₃의 H 피크(2)가 확인되며 실리콘 변성 에폭시 수지(PDMSME)는 3.3 ppm에서 에폭시 링에 기인된 H 피크(5)가 확인됨을 알 수 있다. 반면, 실란 커플링제

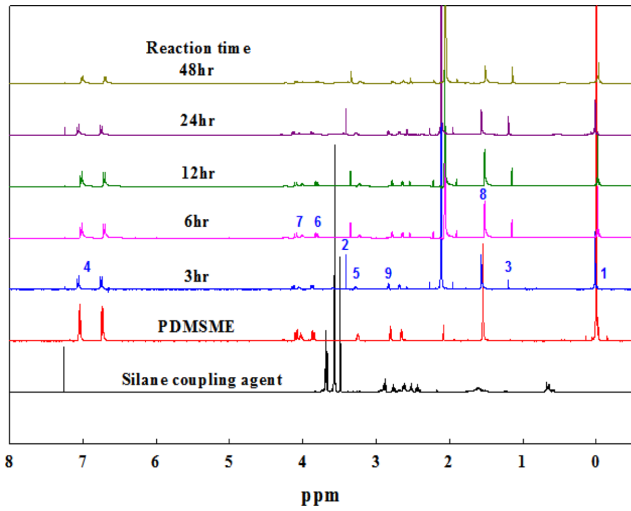


Figure 3. ¹H NMR spectrum of silicone modified epoxy coating materials as a function of reaction time.

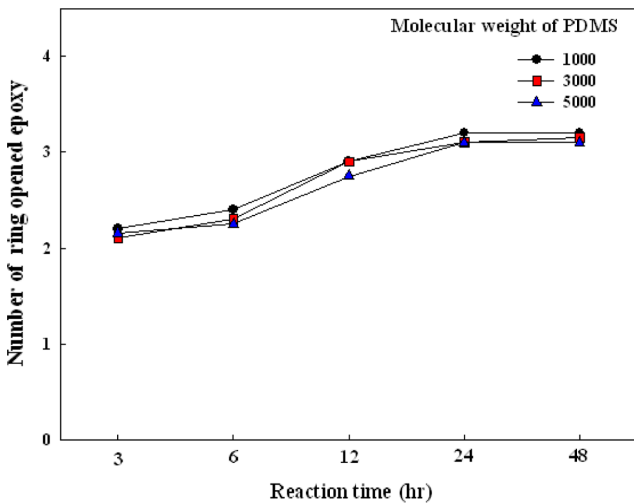


Figure 4. Effect of reaction time on the number of ring opened epoxy in PDMSME coating materials.

에 의하여 반응된 코팅액은 PDMSME의 말단기에 결합된 에폭시 링의 개환에 의한 2.9 ppm에서의 -CH₂-의 H 피크(9)를 확인할 수 있다. 따라서 0.1 ppm의 PDMS의 -CH₃에 기인된 H 피크(1)와 3.3 ppm의 에폭시 링의 개환에 의해 생긴 -CH₂-에 기인된 H 피크(5)의 면적을 상대 비교함으로써 실란 커플링제에 의하여 개환된 에폭시 링의 개수를 확인하여 Figure 4에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 3시간 반응에 의해 개환된 에폭시 링의 개수가 2.2에서 24시간 반응에 의하여 3.2로 증가됨을 알 수 있다. Figure 2에서 확인된 바와 같이 분자량 1000의 PDMS를 사용하여 24시간 반응하여 얻어지는 PDMS에 결합된 에폭시 링의 개수가 3.2개임에 따라 실란 커플링제에 의하여 개환될 수 있는 최대 에폭시 링의 개

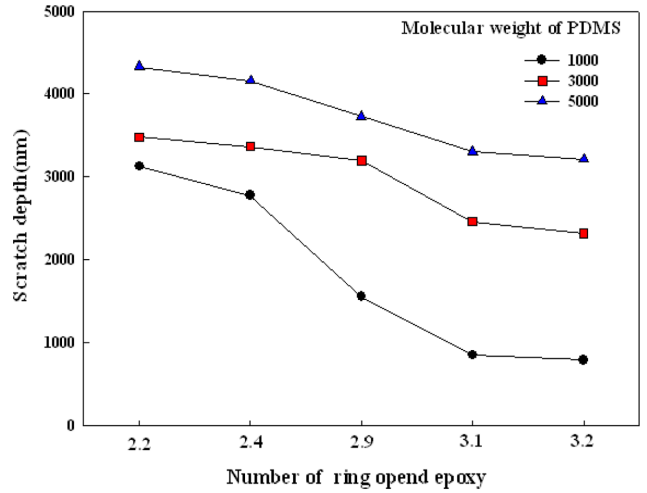


Figure 5. Hardness of silicone modified epoxy coating materials as a function of the number of ring opened epoxy in PDMSME and molecular weight of PDMS.

수는 3.2이며 따라서 24시간 반응에 의하여 PDMS에 결합된 에폭시 링 모두가 개환됨을 알 수 있다. Figure 2에서 확인된 것과 마찬가지로 PDMS의 분자량은 실란 커플링제에 의한 에폭시 링의 개환에는 크게 영향을 미치지 못함을 알 수 있다. 개환된 에폭시 링은 대기 중의 수분과 만나 수가교가 진행된다.¹⁹⁻²² 따라서 개환된 에폭시 링의 수는 코팅 막의 가교 정도와 밀접한 관계가 있으며 이에 의한 코팅 막 물질 또한 변화될 것으로 예측된다.

Figure 5에 실란 커플링제를 이용하여 양 말단 에폭시 링이 개환된 언더코팅액으로 코팅된 PET 필름의 표면 경도를 개환된 에폭시 링의 개수 즉, 대기 중에서 물과 수가교 반응이 가능한 개환된 에폭시 링의 개수에 따라 나타내었다. Scratch depth가 낮음은 코팅 막이 스텐레스 봉에 의하여 덜 굽힘을 의미하며 따라서 코팅 막의 경도가 높음을 의미한다. 그림에서 보는 바와 같이 가교 반응이 가능한 에폭시 링의 개수가 증가함에 따라 scratch depth가 낮아지는 것으로 보아 코팅된 도막의 경도가 증가됨을 알 수 있다. 이는 수가교 가교 반응 사이트의 증가에 따라 언더코팅액의 가교밀도가 증가되며 따라서 도막의 경도가 증가됨을 알 수 있다. 이와 함께 Figure 5에서 보는 바와 같이 사용 PDMS의 분자량이 증가됨에 따라 scratch depth가 증가되는 것으로 보아 PDMS의 분자량은 코팅 막의 경도를 감소시킴을 알 수 있으며 이는 탄성적 성질을 갖는 PDMS의 분자량이 커짐에 따라 경도는 상대적으로 낮아지는 것으로 판단된다.

Table 1에 에폭시와 실리콘 변성 에폭시 코팅액으로 코팅된 PET 필름을 다양한 직경을 가진 봉에 감아 크랙이 발생하는 직경을 필름의 휨성으로 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 에폭시로 코팅된 필름은 사용한 봉의 직경에 관계없이 모두 크랙이 발생하여 휨성이 매우 나쁨을 알 수 있다. 이

Table 1. Flexibility of Epoxy and PDMSME Coated PET Films (Reaction Time with Silane Coupling Agent is 24 hr)

Coating Materials	Rod diameter for flexibility test (mm)			
	5	7	10	15
Epoxy	O	O	O	O
PDMSME(Mw=1000)	X	X	X	X
PDMSME(Mw=3000)	X	X	X	X
PDMSME(Mw=5000)	X	X	X	X

와는 달리 실리콘 변성 에폭시 코팅액으로 코팅된 PET 필름의 경우 본 연구에서 사용한 5~15 mm 봉의 직경 범위에서 전혀 크랙이 발생하고 있지 않음을 알 수 있다. 이러한 현상은 PDMS의 분자량 및 PDMSME에 개환된 에폭시 링의 개수와 상관없이 모두 우수한 휨성을 보임을 알 수 있다. 휨성은 사용 PDMS의 우수한 탄성적인 성질에 기인됨을 알 수 있다. 따라서 실리콘 변성 에폭시 코팅액은 개환된 에폭시 링의 개수와 사용된 PDMS의 분자량을 조절함으로써 우수한 경도를 가짐과 동시에 휨성을 갖는 코팅 막을 제조할 수 있음을 의미한다.

실리콘 화합물은 실리콘이 갖는 우수한 표면 에너지 특성에 의하여 코팅 막의 표면 접촉각의 변화가 예상된다. Figure 6에 실리콘 변성 에폭시 코팅액의 표면 접촉각 특성을 나타내었다. 일반 에폭시 수지로 코팅된 막의 접촉각이 60°인 것과 비교하여 실리콘 변성에 의하여 접촉각이 87~118°로 증가됨을 알 수 있다. PDMS에 포함된 실리콘에 의하여 언더코팅막이 소수성을 가짐을 알 수 있다. 그림에서 보는 바와 같이 PDMS의 분자량이 증가할수록 그리고 수가교가 가능한

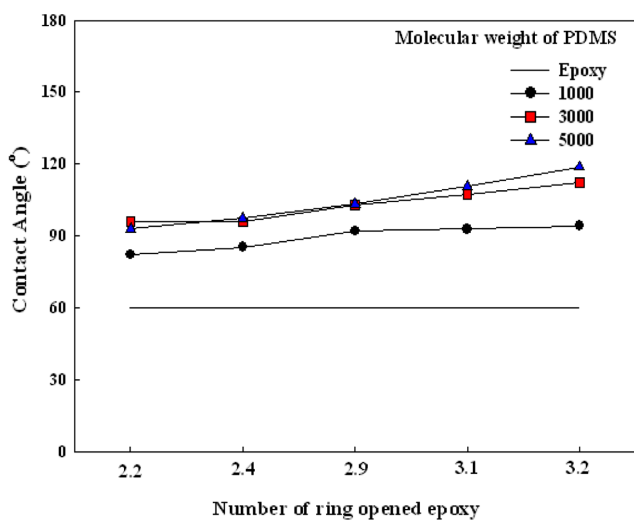


Figure 6. Contact angle of silicone modified epoxy coating materials as a function of the number of ring opened epoxy in PDMSME and molecular weight of PDMS.

개환된 에폭시 링의 개수의 증가는 가교 밀도의 증가를 의미하여 PDMS 말단에 결합된 에폭시가 가교됨에 따라 실리콘 분자의 특성인 entanglement가²²⁻²⁴ 감소됨에 따라 실리콘이 코팅 표면으로 더 쉽게 배치될 수 있음에 따라 소수성이 증가되는 것으로 생각할 수 있다. 이러한 소수성의 증가는 코팅 기관에 인쇄가 필요하는 경우 단점으로, 내 지문성이 요구되는 경우 장점으로 작용할 수 있다.

Figure 7에 코팅 도막의 표면 거칠기를 개환된 에폭시 링의 개수에 따라 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 표면 거칠기는 개환된 에폭시 링의 개수의 증가 즉, 수가교가 많

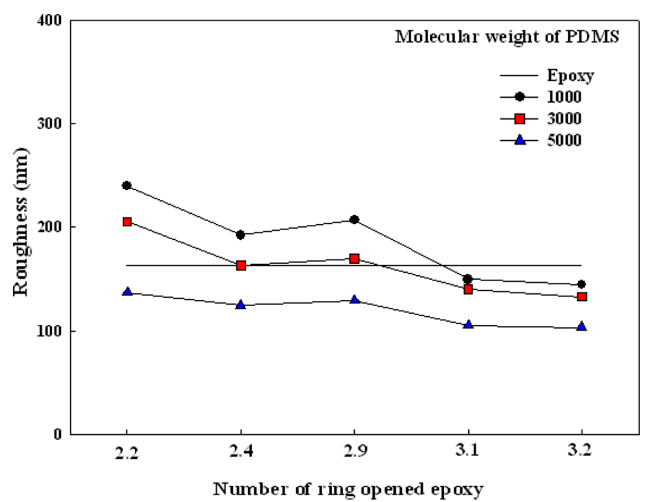


Figure 7. Surface roughness of PDMSME coated PET films as a function of the number of ring opened epoxy in PDMSME and molecular weight of PDMS.

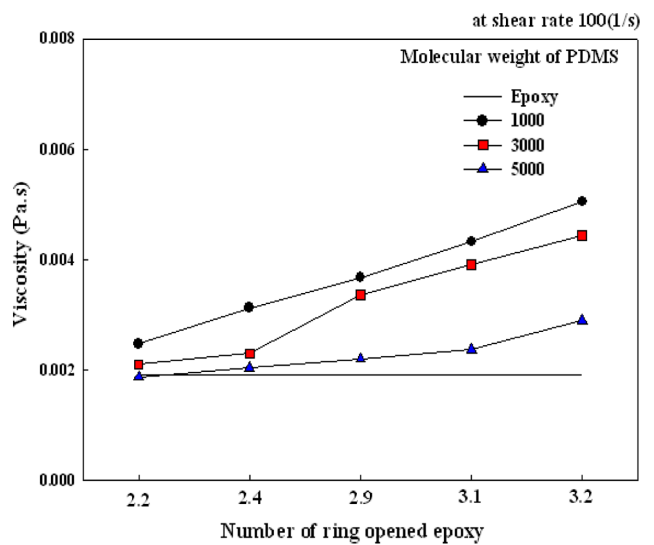


Figure 8. Rheological properties of PDMSME coating materials (solid content: 30 wt%) as a function of the number of ring opened epoxy in PDMSME and molecular weight of PDMS.

이 진행된 코팅 도막일수록 낮아짐을 알 수 있다. 이는 가교가 진행됨에 따라 도막의 가교 밀도가 증가되어 표면특성이 개선됨을 의미한다. Figure 7에 PDMS의 분자량이 코팅 도막의 표면 거칠기에 미치는 영향을 함께 나타내었다. 일반적으로 분자량이 증가함에 따라 코팅액 점도의 증가에 의하여 표면 거칠기가 거칠어 질 것으로 생각되나 Figure 7에서 보는 바와 같이 PDMS의 분자량 증가에 따라 표면 거칠기가 감소함을 알 수 있다. 이는 분자량 증가에 따른 도막에 포함된 실리콘 함량증가에 의한 소수성 증가와 함께 Figure 8에서 보는 바와 같이 PDMS 분자량 증가에 따른 코팅용액의 점도가 감소함에 기인하는 것으로 생각된다. 코팅 용액의 점도의 감

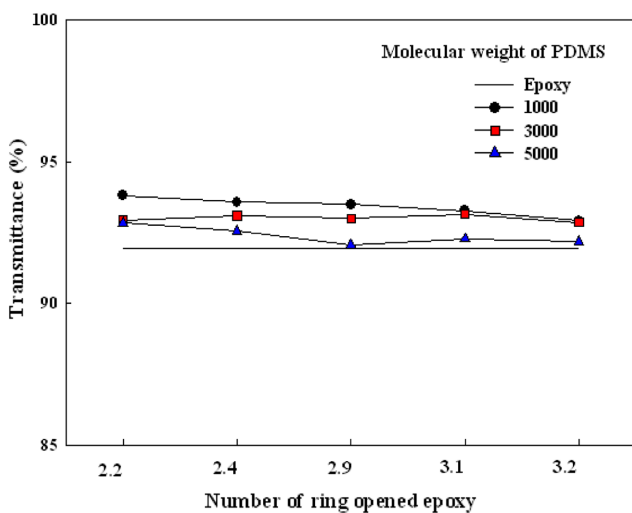


Figure 9. Transmittance of PDMSME coated PET films as a function of the number of ring opened epoxy in PDMSME and molecular weight of PDMS at 550 nm.

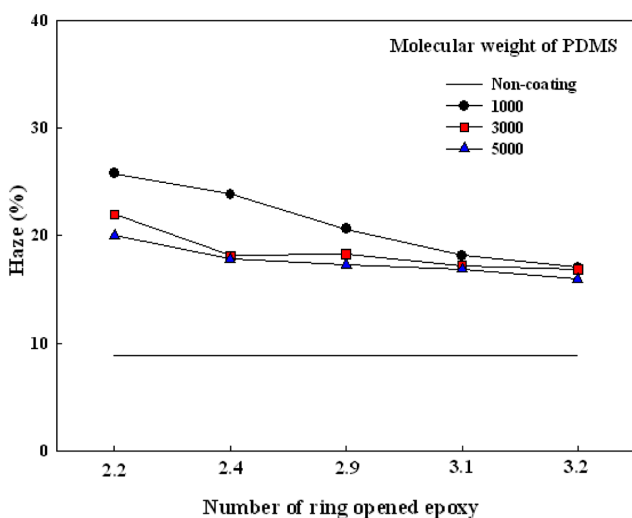


Figure 10. Haze of PDMSME coated PET films as a function of the number of ring opened epoxy in PDMSME and molecular weight of PDMS at 550 nm.

소는 PDMS의 분자량이 증가됨에 따라 아세톤 용액에 의하여 PDMSME 사슬이 뭉쳐지는 entanglement 현상이 감소되며 따라서 점도가 감소되는 것으로 유추할 수 있다.

Figures 9와 10에 코팅 도막의 광투과도와 haze를 개환된 에폭시 링의 개수에 따라 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 에폭시로 코팅된 도막에 비하여 실리콘 변성 에폭시로 코팅된 도막의 광 투과도가 높음을 알 수 있다. 광 투과도의 변화는 크지는 않지만 개환된 에폭시 링의 개수가 감소될수록 사용 PDMS의 분자량이 작을수록 광 투과도가 높음을 알 수 있다. 이는 Figure 7에서 확인된 바와 같이 PDMS의 분자량이 클수록 그리고 개환된 에폭시 링의 개수가 많을수록 즉, 가교도가 증가될수록 도막의 표면 거칠기가 낮아짐을 알 수 있다. 그 결과, Figure 10에서 확인된 바와 같이 haze가 에폭시로 코팅된 도막보다 월등히 높음에 따라 직접 투과되는 빛과 산란에 의하여 투과되는 haze의 합으로 표시되는 광 투과도가 증가됨을 알 수 있다. 이러한 결과는 광 투과도가 85% 이상 요구되는 디스플레이용 유연기판으로 적용에 문제가 없음을 알 수 있다. 하지만, haze의 증가에 따른 광 투과도의 증가는 빛의 산란이 문제가 되는 디스플레이용 유연기판 적용에 제한적인 요소로 작용할 수 있어 이에 대한 개선이 요구된다.

결론

본 연구에서는 유연기판의 치수안정성을 위한 유리메쉬 함유 에폭시 유연기판의 표면 평활도 조절에 사용될 수 있는 실리콘 변성 에폭시 언더코팅액의 변성 조건에 따른 코팅막의 물성 변화에 대하여 살펴보고 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 실리콘 변성 에폭시 코팅액의 가교를 유발하는 개환된 에폭시 링의 개수는 실리콘 변성 에폭시 수지의 합성 조건과 실란 커플링제를 이용한 수 가교 사이트 형성 반응조건에 따라 달라짐을 알 수 있었다.
2. 실리콘 변성 에폭시의 개환된 에폭시 링의 개수가 증가됨에 따라 코팅 도막의 경도는 증가됨을 확인하여 이는 수가교의 증가에 의한 결과임을 알 수 있었다. 경도 증가와 함께 사용 PDMS의 탄성적인 성질에 의하여 도막의 휨성이 우수해짐을 알 수 있었다.
3. PDMS의 함량 증가에 따른 코팅액의 실리콘 함량 증가에 따라 코팅 도막의 접촉각이 증가되는 것으로 보아 코팅 표면이 소수성을 띠게 됨을 알 수 있었다. 이러한 소수성의 변화는 PDMS 분자량과 개환된 에폭시 링의 개수와 관계있음을 확인하였다.
4. 코팅 도막의 표면 거칠기는 코팅액의 개환된 에폭시 링의 개수가 증가할수록, PDMS의 분자량이 증가할수록 감소되며 이는 도막의 광 투과 특성에 영향을 미침을 알 수 있었다.

감사의 글: 본 연구는 2013년도 우수제조기술연구센터 ATC 사업(10032889, 플렉시블 디스플레이 기관용 저CTE 고내열 광학필름 제조기술 확보)과 경기도지역협력연구사업(GRRC 단국 2011-B04, 광전소자 기능성 코팅액 제조 및 코팅 공정 개발)에 의하여 수행된 연구로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. J. H. Lee, H. Y. Chu, K. S. Suh, and K. Y. Kang, *ETRI*, **20**, 6 (2005).
2. A. Sugimoto, H. Ochi, S. Fujimura, A. Yoshida, T. Miyadera, and M. Tsuchida, *IEEE*, **10**, 1 (2004).
3. R. S. Porter and L. H. Wang, *Polymer*, **33**, 2019 (1992).
4. E. Andresen and G. Zachmann, *Colloid Polym. Sci.*, **272**, 1352 (1994).
5. M. Suzuki, K. Sato, and M. Umeda, U.S. Patent, 5,837 (1998).
6. G. H. Kim and K. S. Suh, *ETRI*, **21**, 5 (2006).
7. P. H. Hermans and P. Platzek, *Kolloid Z.*, **88**, 68 (1939).
8. P. H. Hermans and J. De Booy, *Kolloid Z.*, **88**, 73 (1939).
9. J. J. Hermans, P. H. Hermans, D. Vermaas, and A. Weidinger, *J. Polym. Sci.*, **3**, 1 (1947).
10. S. Murakami, Y. Nishikawa, M. Tsuji, A. Kawaguchi, S. Kohjiya, and M. Cakmak, *Polymer*, **36**, 291 (1995).
11. J. G. Cook, H. P. W. Huggill, H. P. W., and A. R. Lowe, British Patent, 604,73 (1948).
12. H. Yano, J. Sugiyama, A. Nakagaito, M. Nogi, T. Matsuura, M. Hikita, and K. Handa, *Adv. Mater.*, **17**, 154 (2005).
13. J. Y. Kim, S. I. Han, D. K. Kim, and S. H. Kim, *Composite, Part A*, **40**, 45 (2009).
14. W. Kim, Y. Y. Kim, J. S. Son, D. S. Yun, C. Han, J. K. Choi, and B. W. Jo, *Elastomer*, **37**, 244 (2002).
15. J. H. Kim, H. S. Kim, and H. J. Kang, *Polymer(Korea)*, **36**, 6 (2012).
16. H. Ito, W. Oka, H. Goto, and H. Umeda, *JJAP*, **45**, 4324 (2006).
17. J. H. Back, J. H. Lee, M. K. Lee, C. C. Seo, S. T. Kwak, and J. I. Moon, *Mag. Sci. Tech.*, **12**, 55 (2006).
18. J. K. Kim, Master Thesis, Dankook University (2014).
19. K. H. Kim, Master Thesis, Dankook University (2010).
20. J. K. Kim, S. T. Kim, C. R. Choi, S. E. Noh, and M. C. Lee, *Polymer*, **19**, 65 (1995).
21. C. Ramirez, M. R. A. Torres, L. Barral, J. Lopez, and B. Montero, *J. Eur. Polym.*, **44**, 3035 (2008).
22. C. A. Dreiss, T. Cosgrove, N. J. Benton, D. Kilburn, M. A. Alam, R. G. Schmidt, and G. V. Gordon, *Polymer*, **48**, 4419 (2007).
23. R. A. Mrozek, P. J. Cole, K. J. Otim, K. R. Shull, and J. L. Lenhart, *Polymer*, **52**, 3422 (2011).
24. J. B. Ahn, B. S. Cho, E. S. Yoo, and S. T. Noh, *Korean Chem. Eng. Res.*, **50**, 292 (2012).