

## POSS계 첨가제를 가지는 실리콘 젤의 제조와 LED 봉지재 응용

은희천 · 임희은 · 이윤상\* · 곽영제†

숭실대학교 유기신소재·파이버공학과, \*숭실대학교 물리학과  
(2014년 8월 14일 접수, 2014년 9월 13일 수정, 2014년 9월 27일 채택)

### Preparation of Silicon-Based Hybrid Gels with POSS Additives and Their Application to LED Encapsulants

Hee-Chun Eun, Hee-Eun Im, Yun Sang Lee\*, and Young-Je Kwark†

Department of Organic Materials and Fiber Engineering, Soongsil University, Seoul 156-743, Korea

\*Department of Physics, Soongsil University, Seoul 156-743, Korea

(Received August 14, 2014; Revised September 13, 2014; Accepted September 27, 2014)

**초록:** 고경도의 LED 봉지재로 치밀한 구조를 가지는 polyhedral oligomeric silsesquioxane(POSS)를 첨가제로 사용한 실리콘 젤을 제조하였다. 실록산 수지와와의 상용성을 증가시키기 위하여 알킬기와 올리고실록산기를 가지로 갖는 POSS를 합성하였다. Hydrosilylation 반응을 통하여 가지와 POSS를 연결하였고, 1-decanol과 9-decen-1-ol의 반응에는  $H_2PtCl_6$ 을, 말단에 비닐기를 가지는 올리고실록산의 반응에는 1,3-divinyl tetramethyldisiloxane[Pt(dvs)]을 촉매로 사용하였다. 알킬기를 가지는 POSS(Decyl-POSS, Decenyl-POSS)를 사용한 실리콘 젤의 경우 실록산 수지와와의 혼화성이 낮아서, 가시광선 영역의 투과도가 낮았으며 경도값도 낮았다. 이에 비해 올리고실록산기를 가지로 가지는 POSS(Siloxy-POSS)를 적용하였을 경우에는 실록산 수지와 혼화성이 우수하여 높은 투명도를 보였으나, POSS의 첨가로 인한 경도 증가는 뚜렷하게 나타나지 않았다.

**Abstract:** Densely structured polyhedral oligomeric silsesquioxane (POSS) was employed as an additive to enhance hardness of silicon-based hybrid gels for LED encapsulants. To improve the miscibility of POSS and polysiloxane resin, alkyl or oligosiloxane branches were introduced to POSS moiety. Platinum-catalyzed hydrosilylation reactions were used to attach branches of 1-decanol, 9-decen-1-ol, and vinyl-terminated oligosiloxane to the POSS molecules. Alkyl-branched POSSs (decyl-POSS and decenyl-POSS) were immiscible with polysiloxane resin and generated gels with low transparency and low hardness values. On the other hand, oligosiloxane-branched POSS (Siloxy-POSS) showed good miscibility with polysiloxane resin to give gels with high transparency. However, the prepared gels did not show noticeable improvement in hardness compared to the gels without the POSS additive.

**Keywords:** LED encapsulant, silicon gel, POSS, transparency, hardness.

## 서 론

발광다이오드(light emitting diodes, LED)는 기존 광원들에 비해 높은 광효율, 낮은 에너지 사용량, 긴 수명 등의 장점을 가지고 있기 때문에<sup>1,2</sup> 일반 조명을 비롯한 많은 분야에서 사용이 증가되고 있다.<sup>3</sup> LED의 구성 요소 중 발광칩을 보호하기 위한 봉지재로는 에폭시 수지가 일반적으로 사용된다. 그러나 LED가 고출력화되고 청색광이나 자외선의 고에너지 광원을 사용하게 됨에 따라 발열이 많아지고 이에 따라 에폭시 수지가 황변되는 문제가 생기기 때문에<sup>4,5</sup> 실리콘 수지를 봉

지재로 사용하는 경우가 많아지고 있다.<sup>6-12</sup>

봉지재로 사용되는 재료는 광학적인 투명성, UV에 대한 내광성, LED 열방출에 대한 내열성, 광 추출효율의 향상을 위한 굴절률, 고경도, 고수분차단성, 접착력의 신뢰성, 열응력 완화를 위한 저수축률 등의 복합적인 특성이 요구된다. 그 중 고경도와 고수분차단성은 LED용 봉지재가 갖추어야 할 중요한 특성 중 하나이다. LED 조명이 가지는 높은 수명을 발현하기 위해서는 발광칩이 외부로부터 적절히 차단되어 있어야 하므로 봉지재로 사용되는 재료는 높은 경도와 수분차단성을 갖춰야 한다.

높은 경도와 수분차단성을 부여하기 위해서는 봉지재의 구조를 치밀하게 할 수 있는 물질을 첨가제로 사용할 수 있다. Polyhedral oligomeric silsesquioxane(POSS)는 1~3 nm 크기

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: ykwark@ssu.ac.kr

©2015 The Polymer Society of Korea. All rights reserved.

의 3차원 구조를 지닌 가장 작은 실리카 입자로 치밀한 구조를 가지고 있으며 화학적으로나 열적으로도 매우 안정하다. POSS를 첨가하면 물질의 경도, 내수성, 내후성, 가스차단성, 내열성, 절연성 등 다양한 특성이 증가하므로 다양한 치환체를 가진 POSS 구조를 개발하여 유-무기 하이브리드 물질로 응용하는 연구가 널리 이루어지고 있다.<sup>13-16</sup> 본 연구에서는 POSS를 첨가제로 사용한 LED 봉지재용 실리케네 젤을 제조하였다. 일반적으로 실록산 수지를 사용하여 LED 봉지재를 제조할 때에는 액상의 실록산 수지, 가교제, 백금 촉매를 용매 없이 혼합한 후 온도를 높여 가교시키는 방법을 사용한다. 그러나 대부분의 POSS계 물질은 고체상이어서 이를 그대로 고점도의 실록산 수지와 혼합하면 POSS가 균일하게 분산되지 않는 문제가 생긴다. 따라서 본 연구에서는 POSS에 알킬기나 올리고실록산을 가지로 도입하여 기존 실록산 수지와 혼화성을 높이고자 하였다.

## 실 험

**재료와 분석.** Octakis(dimethylsiloxy)silsesquioxane(Octa-Silane-POSS)은 Hybrid Plastics사의 제품을 구입하여 사용하였다. 1-Decanol과 9-decen-1-ol은 Aldrich에서, 말단에 비닐기를 가지는 poly(methylphenyl siloxane) (vinyl-terminated poly(methylphenyl siloxane), vinyl-PMPS;  $M_n \sim 2000$ )은 Gelest에서 구입하여 사용하였다. Hydrogen hexachloroplatinate(IV) hexahydrate( $H_2PtCl_6 \cdot 6H_2O$ )와 platinum(0)-1,3-divinyl-1,1,3,3-tetramethyldisiloxane[Pt(dvs)](0.1 M in xylene)은 Aldrich에서 구입하여 사용하였다. 그 밖의 시약들은 1급 이상의 시약을 구입하여 정제하지 않고 사용하였다. 봉지재의 제조를 위한 비닐기 함유 실록산 수지(poly(methylvinyl siloxane)-copoly(methylphenyl siloxane), PVPS)와 hydrosilane계 가교제(polyhydrosiloxysiloxane, PHSS)는 Gelest사의 제품을 사용하였다. Figure 1은 사용한 화합물의 구조를 보여준다.

젤 투과 크로마토그래피(gel permeation chromatography, GPC)를 이용하여 합성한 수지의 분자량을 확인하였다. GPC는 굴절률 검출기가 부착된 Waters GPC system을 사용하였다. 용매는 tetrahydrofuran(THF)을 사용하였고, Polymer Laboratory Mixed-C column 3개를 연결하여 사용하였다. 시

료는 1~2%(w/v)의 농도로 희석하여 사용하였으며 40 °C에서 1 mL/min의 유속으로 측정하였다. 분자량을 교정하기 위해 좁은 분자량 분포를 가지는 폴리스티렌 기준물질을 사용하였다. Fourier transform infrared spectroscopy(FTIR) 분석에는 Jasco사의 FTIR 6300을 사용하였다. 측정은 NaCl 펠렛을 사용하여 투과법으로 측정하였으며, 스캔 수 16회, 해상도는  $2\text{ cm}^{-1}$ ,  $4000\sim 400\text{ cm}^{-1}$  범위의 조건으로 측정하였다.  $^1\text{H}$  nuclear magnetic resonance spectroscopy( $^1\text{H}$  NMR)는 Bruker사의 400 MHz NMR을 사용하였다. 용매로는  $CDCl_3$ 을 사용하였다. 경화된 수지의 투과도를 확인하기 위해 Shimadzu사의 UV-Vis-NIR spectrophotometer인 UV-3600을 사용하였다. 1 mm의 간격을 가지는 두 개의 슬라이드 글라스로 만든 틀에 수지를 넣고 경화시켜 시료를 제조하였다. 해상도는  $1\text{ cm}^{-1}$ 로 하고  $300\sim 800\text{ cm}^{-1}$  범위에서 측정하였다. 혼화성에 따른 상분리 현상을 확인하기 위해 Sometchs사의 광학현미경을 이용하여 배율 10000배로 경화된 수지를 관찰하였다. Teclock사의 GS-706G를 이용하여 경화된 수지의 경도를 측정하였다. 0~100의 값으로 표시되는 경도계의 하중은 55~855 gf에 해당한다. 경도 측정을 위한 시료는  $2\text{ cm} \times 2\text{ cm} \times 3\text{ mm}$ 의 크기로 만든 테플론 틀에 용액을 넣고 열처리하여 경화시킨 후 틀을 분리하여 얻었다.

**알킬 가지를 가지는 POSS의 합성.** 질소 가스를 주입하고 있는 3구 플라스크에 THF 20 mL, OctaSilane-POSS 1.0 g (1 mmol), 1-decanol(1.58 g) 또는 9-decen-1-ol(1.56 g),  $H_2PtCl_6 \cdot 6H_2O$  0.5 mol%를 첨가한 후 85 °C에서 3시간 동안 반응하였다. 반응이 종결된 후 활성탄을 이용하여 잔존 Pt 촉매를 제거하였고, 여과 후 낮은 압력 하에서 증류하여 용매를 제거하였다.

**실록산 가지를 가지는 POSS의 합성.** 질소 가스를 주입하고 있는 3구 플라스크에 THF 20 mL, OctaSilane-POSS 1.0 g, vinyl-PMPS 20 g, Pt(dvs) 용액(100  $\mu\text{L}$ )을 첨가한 후 85 °C에서 3시간 동안 반응하였다. 반응이 종결된 후 활성탄을 이용하여 잔존 촉매를 제거하였고, 여과 후 낮은 압력 하에서 증류하여 용매를 제거하였다.

**봉지재용 수지의 경화.** PVPS와 가지 달린 POSS의 혼합물(5~20 wt%) 1 g과 PHSS 0.1 g을 40 °C에서 30분간 교반하여 완전히 섞이게 하였다. 혼합액에 Pt(dvs) 용액 100  $\mu\text{L}$ 를

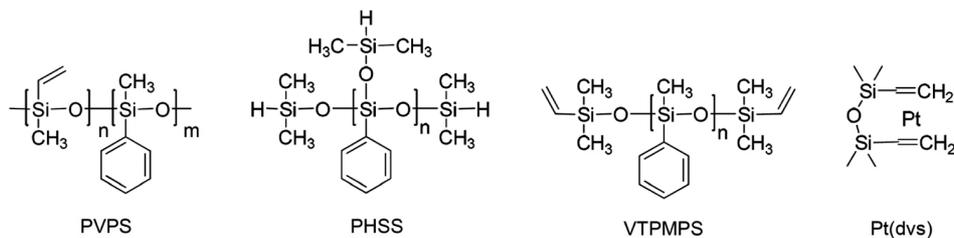


Figure 1. Chemical structures of polysiloxanes and Pt catalyst.

넣고, 아르곤 기류 하에서 140°C까지 10°C/min으로 승온 후 3시간 동안 경화를 진행하였다.

### 결과 및 토론

**가지 달린 POSS의 합성.** LED 봉지재로 쓰이는 실록산 수지와 POSS계 물질의 혼화성을 높이기 위하여 POSS에 알킬기, 말단에 비닐기를 가지는 알킬기, 올리고실록산기 세 가지 다른 구조의 가지를 도입하였다. 알킬기는 POSS를 액체상으로 만들어 혼합을 쉽게 해줄 것으로, 말단에 도입된 비닐기는 이에 더해 경화과정에서 Si-H기를 가지는 다른 구성 성분과 화학적으로 결합하여 더 안정적인 혼합상태를 유지할 것으로, 그리고 올리고실록산기는 주성분인 실록산 수지와 더욱 높은 혼화성을 보일 수 있을 것으로 기대했다.

POSS와 가지 사이의 결합에는 Si-H를 가지는 OctaSilane-POSS와 alkanol 사이의 hydrosilylation 반응을 이용하였다 (Figure 2). Si-H와의 hydrosilylation 반응은 히드록시기와 비닐기 모두 일어날 수 있는데, 이는 사용하는 촉매에 따라 선택성이 달라질 수 있다. H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>를 촉매로 사용하는 경우에는 히드록시기와의 반응이 우선적으로 일어나고, Pt(dvs)를 사용하는 경우는 비닐기와의 반응이 선택적으로 일어난다.<sup>17</sup> 히드록시기만 존재하는 1-decanol은 H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>를 촉매로 사용하여 OctaSilane-POSS에 가지로 연결하였다(Decyl-POSS). Hydrosilylation 반응 여부는 FTIR을 이용하여 확인하였다(Figure 3). OctaSilane-POSS의 Si-H기는 2140 cm<sup>-1</sup>에서 신축진동 피

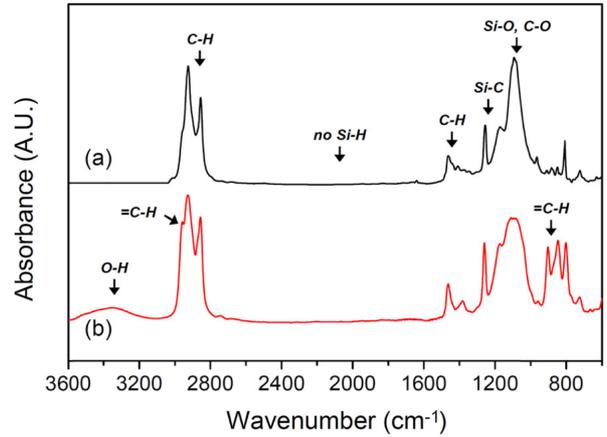


Figure 3. FTIR spectra of (a) decyl-POSS; (b) decenyl-POSS.

크를 보이는데, 반응이 진행됨에 따라 이 피크가 모두 사라지는 것을 확인할 수 있었다. 또한 3200~3600 cm<sup>-1</sup>에 나오는 히드록시기의 O-H 신축진동 피크도 보이지 않는 것으로 보아 두 반응기 사이의 hydrosilylation 반응이 일어나 OctaSilane-POSS에 8개의 decyl 가지가 생성된 것을 확인하였다. 말단에 비닐기를 가지는 9-decen-1-ol의 경우(decenyl-POSS), H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>를 촉매로 사용하여 반응하였을 때 히드록시기와 비닐기 사이에 경쟁적인 반응이 일어났다. Figure 3의 FTIR 스펙트럼에서는 2140 cm<sup>-1</sup>의 Si-H 신축진동 피크가 모두 사라진 반면, 3200~3600 cm<sup>-1</sup>에서 O-H 신축진동 피크와 3100~3000 cm<sup>-1</sup> 사이와 900 cm<sup>-1</sup>에서 각각 =C-H의 신축진동과 굽

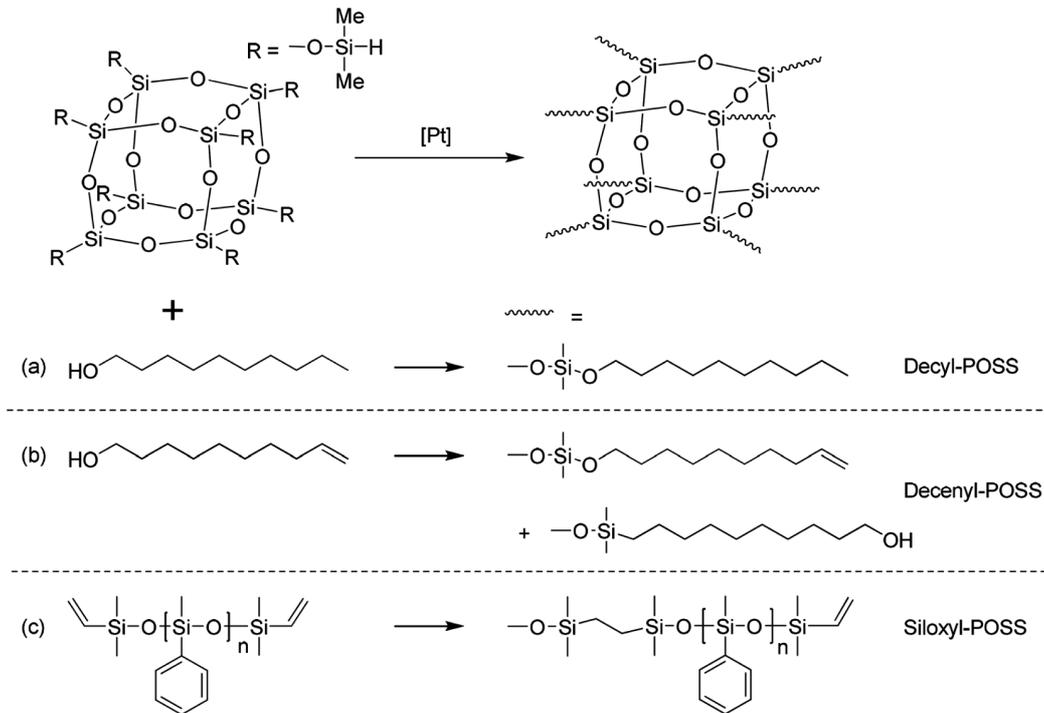


Figure 2. Synthetic schemes of branched POSS additives.

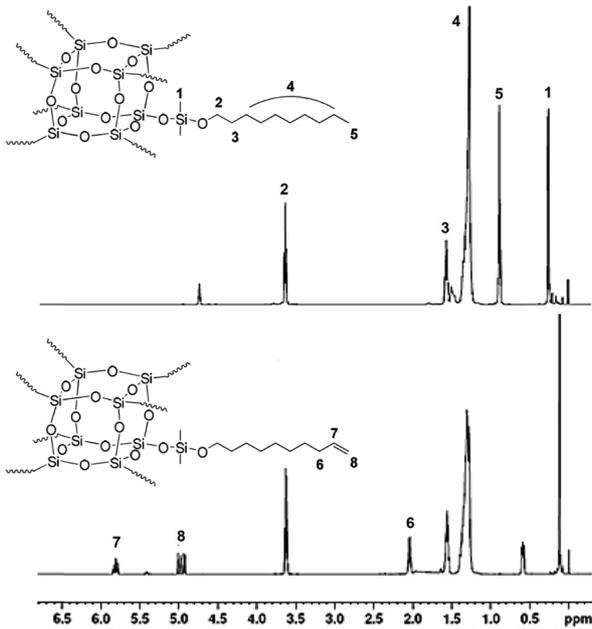


Figure 4.  $^1\text{H}$  NMR spectra of (a) decyl-POSS; (b) decenyl-POSS.

록시기와 비닐기 쪽으로의 반응이 모두 일어나 두 반응기의 일부가 남아 있었다.  $^1\text{H}$  NMR에서도 5.0과 5.8 ppm에서 비닐기에 해당하는 proton의 피크와 2.1 ppm의 allylic 위치의 proton 피크가 확인되었는데, 이들과 methylene proton의 피크의 적분값을 비교하여 정량한 히드록시/비닐기 반응의 비는 약 3/1인 것으로 확인되었다(Figure 4). 반응 후 생성된 가지 달린 decyl-POSS와 decenyl-POSS는 점성을 갖는 액체상을 가졌다.

실록산 수지와 POSS의 혼화성을 더욱 증가시키기 위해 말단에 비닐기를 가지는 올리고실록산을 가지로 갖는 POSS를 합성하였다(Siloxy-POSS). Pt(dvs)를 반응 촉매로 사용하여 3000의 중량평균 분자량을 갖는 올리고실록산과 POSS 사이의 반응을 진행하였다. 먼저 POSS와 올리고실록산의 비를 결정하였다. 이론상 두 성분의 비는 1:8이면 된다. 그러나 사용하는 올리고실록산의 양 말단에 비닐기가 있기 때문에 그 양이 너무 적으면 양 말단이 모두 POSS와 반응하여 가교된 형태의 물질이 만들어질 수 있다. 따라서 올리고실록산은 POSS에 비해 과량 사용하였다. POSS와 올리고실록산의 비를 1:10, 20, 30으로 하여 반응하였다. 1:10의 반응비인 경우에는 완전히 젤화된 물질이 얻어졌고, 1:20이나 1:30의 경우에는 점성의 액체를 얻을 수 있었다. 반응 후 올리고실록산 가지를 가지는 POSS와 미반응 올리고실록산을 분리하는 것은 매우 어렵다. 산업적으로 응용가능하려면 공정의 수를 줄이는 것이 좋고, 또한 남아 있는 올리고실록산이 봉지재 수지로 사용하는 실록산 수지와 비슷한 구조를 가지고 있기 때문에 추가의 분리과정은 거치지 않았다. 반응 정도는 FTIR 스펙트럼에서 보이는  $2140\text{ cm}^{-1}$ 의 Si-H기 흡수 피크로 확인

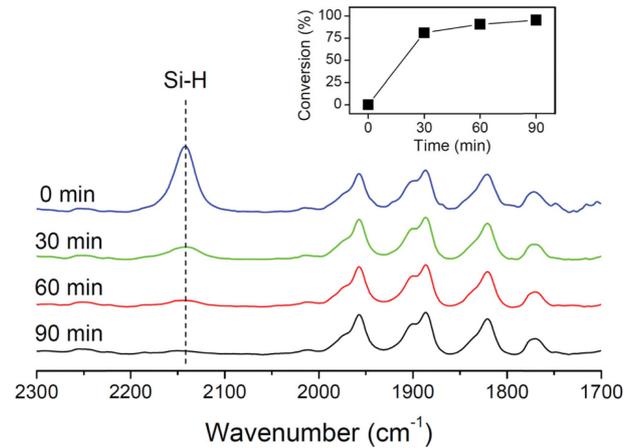
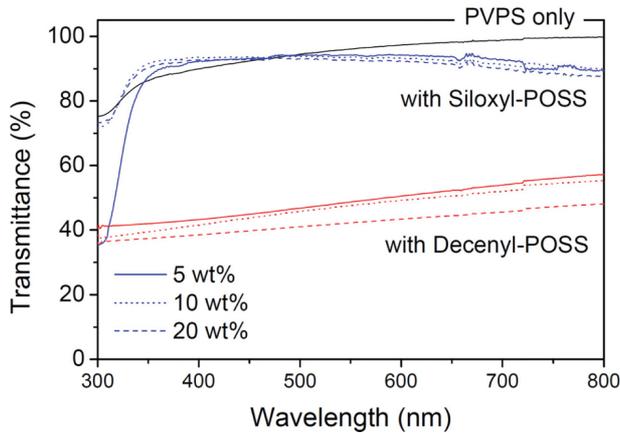


Figure 5. Changes of Si-H peak in FTIR spectra with the reaction time.

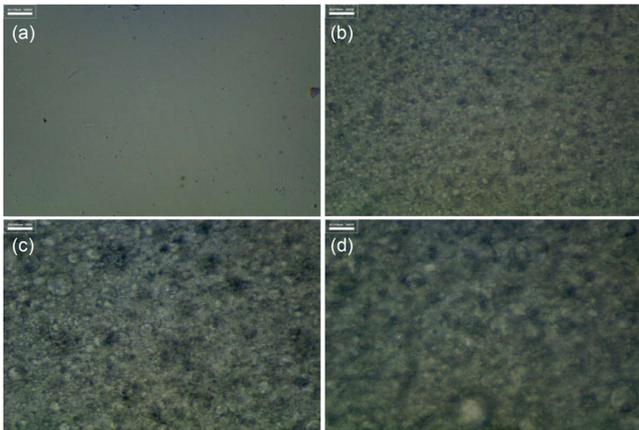
하였다. 두 성분 사이의 반응 정도를 확인하기 위하여 동력학적 거동을 관찰하였다. Figure 5는 POSS와 올리고실록산의 비를 1:20으로 하고 Pt(dvs)를 5 wt%로 하여  $25^\circ\text{C}$ 에서 반응한 결과이다. 반응은 초반에 빠르게 진행하여 약 90분 후에는 완전히 종결되었다. 이로부터 Pt(dvs) 촉매가 두 반응기 사이의 hydrosilylation반응에 매우 효과적임을 알 수 있었다.

Pt(dvs) 촉매는 비닐기와 Si-H기 사이의 hydrosilylation 반응의 촉매로 널리 사용되고 있지만, 생성물에 남아 있을 경우 노란색의 잔류색을 보일 수 있다. 이와 같은 발색은 합성된 올리고실록산 가지를 갖는 POSS를 LED 봉지재로 적용하기에 부적합하기 때문에, 반응에 필요한 최소한의 Pt(dvs) 촉매 농도를 결정할 필요가 있다. 촉매의 농도를 1과 0.5 wt%로 줄였을 때 색은 많이 옅어졌지만, 반응 시간이 증가하여 반응이 종결되는 데 각각 6시간과 24시간이 필요했다.

**LED 봉지재로의 적용.** 가지가 달린 POSS는 기존의 실록산 수지계의 봉지재에 첨가제로 사용되는 것을 목적으로 제조되었다. 이를 위해 제조된 가지달린 POSS는 실록산 수지와 혼화성을 보여야 한다. 제조한 decyl-POSS, decenyl-POSS, 그리고 siloxy-POSS와 실록산 수지인 PVPS와의 혼화성을 확인하였다. Decyl-POSS의 경우, 함량이 5%만 되어도 PVPS와 상분리가 일어나며 투명도가 매우 낮아졌다. 이 현상은 말단에 비닐기를 가진 decenyl-POSS의 경우에도 동일하게 나타났다. Figure 6은 PVPS만 사용하여 제조한 젤과 decenyl-POSS를 5, 10, 20 wt% 첨가하여 제조한 젤의 UV-vis 스펙트럼을 보여준다. PVPS만 사용한 경우, 400 nm에서 92.3%의 투과도를 보이는 반면 decenyl-POSS를 5 wt% 첨가하여 제조한 젤은 44.6%의 낮은 투과도를 보였다. PVPS와 decyl-POSS/decenyl-POSS 사이의 낮은 혼화성은 광학현미경으로도 관찰되는데(Figure 7), 실록산 수지에 decenyl-POSS를 5 wt%만 섞어도 상분리가 일어나는 것이 확인되었다. 올리고실록산 가지를 가진 siloxy-POSS를 적용하였을 경우에는 알



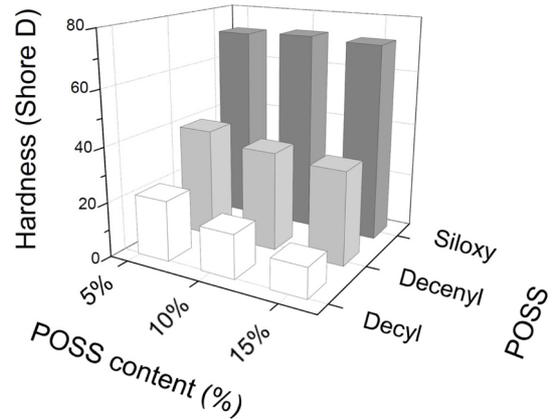
**Figure 6.** UV-Vis spectra of PVPS and PVPS with 5, 10, and 20 wt% of decenyl-POSS and siloxy-POSS.



**Figure 7.** Optical microscope images of PVPS films with different decenyl-POSS contents: (a) PVPS only; (b) 5 wt%; (c) 10 wt%; (d) 20 wt%.

길기를 가지로 가진 POSS를 적용한 경우보다 높은 투명도를 보였다(Figure 7). Siloxy-POSS를 5, 10, 20 wt% 첨가하였을 때 모두 400 nm에서 93% 정도의 투과도를 보여 POSS를 첨가하지 않은 경우와 비슷한 정도의 투명도를 나타냈다. 이것으로 올리고실록산 가지를 가진 siloxy-POSS는 기존 실록산 수지인 PVPS와 높은 혼화성을 보이는 것을 알 수 있었다.

제조한 젤의 경도를 측정하였다(Figure 8). Decyl-POSS를 넣은 젤은 그 함량이 높아질수록 경도값이 낮아져 5, 10, 20 wt%의 함량일 때 각각 20, 16, 11의 값을 보였다. 한편, decenyl-POSS의 경우는 decyl-POSS의 경우보다 조금 높은 경도를 보여 5, 10, 20 wt%의 함량일 때 각각 40, 36, 34의 경도값을 가졌는데, 이는 말단의 비닐기가 경화과정에서 가교제의 Si-H기와 반응하여 연결되었기 때문인 것으로 생각된다. 그러나 이들 알킬 가지를 가진 POSS는 실록산 수지와 혼화성이 낮아 상분리가 일어나기 때문에 생성된 젤의 경도는 POSS를 사용하지 않았을 때(72)보다 더 낮았다. 이에 비하여



**Figure 8.** Hardness of crosslinked PVPS films containing different POSS additives.

실록산 수지와 높은 혼화성을 보인 올리고실록산을 가지로 가지는 siloxy-POSS를 사용한 경우에는 함량에 상관없이 72~73 정도의 높은 경도값을 가졌으나, 기대와는 달리 POSS를 사용하지 않았을 때에 비해 경도는 크게 증가하지 않았다.

## 결론

본 연구에서는 LED용 봉지재로 사용하는 실리콘계 젤의 경도를 높이기 위하여 치밀한 구조를 가지는 POSS 첨가제를 합성하고 이를 적용하는 가능성을 검토하였다. POSS와 실록산 수지와와의 혼화성을 높이기 위해서 POSS에 알킬기나 올리고실록산기를 가지로 연결하였다. 그 중, 알킬 가지를 가진 decyl-POSS와 decenyl-POSS는 실록산 수지와 혼화성을 보이지 못했고, 올리고실록산 가지를 가진 siloxy-POSS는 충분한 혼화성을 보여 UV-Vis 영역에서 높은 투명도를 가지는 젤을 제조할 수 있었다. 그러나 제조된 젤은 기대했던 경도 향상을 충분히 보이지 않았다. 혼화성을 보이지 않은 알킬 가지를 가진 POSS를 함유한 실리콘 젤은 이를 포함하지 않은 실리콘 젤에 비하여 약 44~84%의 경도 저하를 보였으며, 충분한 혼화성을 보인 siloxy-POSS를 포함하는 실리콘 젤은 이를 포함하지 않은 경우와 거의 비슷한 정도의 경도값을 보였다. 이는 실질적으로 첨가되는 POSS의 함량이 적어 POSS의 특성이 나타나지 않은 것으로 판단된다. 실험에 사용된 POSS의 분자량은 가지를 붙이기 전에는 1000 정도였지만, 가지를 붙인 후에는 25000 가량의 분자량을 갖기 때문에 전체 수지의 20 wt%의 함량으로 올리고실록산 가지를 가진 POSS의 함량을 첨가하였어도 실질적인 POSS 부분의 함량은 5% 이하가 된다. 또한 올리고실록산 가지는 단순한 선형 구조로 가교된 구조를 형성할 수 없다. 따라서 전체적인 가교밀도를 낮추는 결과를 가져오게 되고, 이런 이유로 경도의 향상이 크게 나타나지 않은 것으로 생각된다. 또한 가지의 길이가 길

지만 사슬 중간에는 가교에 참여할 수 있는 관능기를 가지고 있지 않고 말단에만 비닐기를 가지고 있기 때문에 가교 밀도를 오히려 낮추는 효과를 보일 수 있을 것으로 생각된다. 따라서 POSS의 실질 함량을 높이고 가교 밀도가 저하되는 것을 막기 위해서는 POSS의 혼화성을 부여하기 위한 올리고실록산 가지의 길이를 최소한으로 해야할 것으로 생각된다.

**감사의 글:** 본 연구는 2011년도 숭실대학교 교내연구비 지원에 의한 연구 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

## 참 고 문 헌

1. H. Lee, J. Park, M. Kim, and J. Kim, *J. KIEEME*, **22**, 1033 (2009).
2. S. Lee, S. Lee, J. Yang, J. Lee, and D. Park, *Trans. KIEE*, **59**, 609 (2010).
3. M. Fan, *Proc. SPIE*, **6841**, 68410G1 (2007).
4. C. B. Y. Janet, U.S. Patent 0247,060 (2007).
5. N. Narendran, Y. Gu, J. P. Freyssinier, H. Yu, and L. Deng, *J. Cryst. Growth*, **268**, 449 (2004).
6. A. W. Norris, M. Bahadur, and M. Yoshitake, *Proc. SPIE*, **5941**, 594115 (2005).
7. A. Sharma, M. Katiyar, Deepak, S. Seki, and S. Tagawa, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 143511 (2006).
8. A. Sharma, M. Katiyar, Deepak, and S. Seki, *J. Appl. Phys.*, **102**, 084506 (2007).
9. J.-S. Kim, S. C. Yang, and B.-S. Bae, *Chem. Mater.*, **22**, 3549 (2010).
10. S. C. Yang, S.-Y. Kwak, J. Jin, J.-S. Kim, Y. Choi, K.-W. Paik, and B.-S. Bae, *J. Mater. Chem.*, **22**, 8874 (2012).
11. Y. C. Han, C. Jang, K. J. Kim, K. C. Choi, K. Jung, and B.-S. Bae, *Org. Electron.*, **12**, 609 (2011).
12. J. Jin, J. J. Lee, B.-S. Bae, S. J. Park, S. Yoo, and K. H. Jung, *Org. Electron.*, **13**, 53 (2012).
13. S. H. Phillips, T. S. Haddad, and S. J. Tomczaka, *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, **8**, 21 (2004).
14. D. Gnanasekaran, K. Madhavan, and B. S. R. Reddy, *J. Sci. Ind. Res.*, **68**, 437 (2009).
15. S.-W. Kuo and F.-C. Chang, *Prog. Polym. Sci.*, **36**, 1649 (2011).
16. W. Zhang and A. H. E. Müller, *Prog. Polym. Sci.*, **38**, 1121 (2013).
17. C. Zhang and R. M. Laine, *J. Am. Chem. Soc.*, **122**, 6979 (2000).