

Sodium Montmorillonite로 개질한 아크릴계 IPMC의 물성과 전기 구동 특성

정한모[†] · 김병춘 · 리영수

울산대학교 화학과

(2005년 3월 11일 접수, 2005년 6월 7일 채택)

Properties and Performance of Electroactive Acrylic Copolymer-Platinum Composite Modified with Sodium Montmorillonite

Han Mo Jeong[†], Byung Choon Kim, and Young Soo La

Department of Chemistry, University of Ulsan, Ulsan 680-749, Korea

(Received March 11, 2005; accepted June 7, 2005)

초록 : Sodium montmorillonite 혹은 sodium montmorillonite가 삽입된 macromer의 존재 하에서 fluoroalkyl methacrylate와 아크릴산을 라디칼 공중합하여 불소화 아크릴계 이온성 고분자/sodium montmorillonite 복합재료를 제조하고, 이들의 X-선 회절 특성, 인장물성, 수분흡수율 등 물리적 성질을 조사하였다. 또, 이들을 이용하여 이온성 고분자-백금 복합재료(IPMC)를 제조하여 수 볼트의 외부 전위에 의한 전류 흐름 및 변위 거동을 측정한 결과, sodium montmorillonite가 이온의 이동을 방해하여 전류 및 변위량의 감소를 초래함을 관찰하였다.

Abstract: Fluoroalkyl methacrylate and acrylic acid were bulk radical copolymerized in the presence of pure sodium montmorillonite or macromer intercalated sodium montmorillonite to get a fluorinated acrylic ionomer/sodium montmorillonite composite, and their physical properties, such as X-ray diffraction pattern, tensile properties, and water uptake, were examined. These composites were used to prepare an ionic acrylic polymer-platinum composite (IPMC). The current and deformation responses of these IPMCs by external voltage applied across the platinum electrodes deposited on both sides of IPMC showed that the cation migration from anode to cathode was suppressed in the presence of sodium montmorillonite, causing reduced current and deformation.

Keywords: ionic polymer-metal composite(IPMC), fluorinated acrylic ionomer, electroactive, sodium montmorillonite, composite.

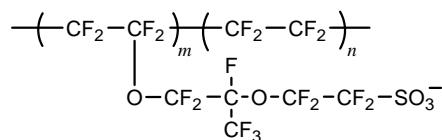
1. 서론

외부의 전기적인 자극에 의하여 형상이 변화되는 전기활성고분자(electroactive-polymer, EAP)는 다양하게 응용될 수 있으므로 여러 분야의 과학자, 기술자들이 많은 관심을 가지고 있는 재료이다. 고분자 재료는 세라믹 재료나 형상기억합금에 비해 가볍고, 가공이 쉬우므로 전기활성재료로의 응용에 상대적인 장점을 가지고 있다.^{1,2}

이온성고분자-금속 복합재료(ionic polymer-metal composite(IPMC))는 EAP의 일종으로, 얇은 고분자 막의 양쪽 면에 금속 전극이 있는 구조를 가지며, 금속 전극은 보통 금속이온을 화학적으로 환원시켜 형성시킨다. IPMC는 양전극 사이에 전압을 가하면 양극(anode) 쪽으로 구부러지는데, 10 V 이하의 비교적 낮은 외부 전압에 빨리 감응하며 변형양이 큰 것이 장점이다. IPMC를 이용하여 가볍고 유연한 소형 구동체(actuator)를 설계할 수 있으므로 의료 분야에서 생체 기능을 모사하는 인공근육, 마이크로 로봇, 마이크로 펌프 등으로 응용될 수 있다.³⁻⁶

IPMC에 관한 지금까지의 연구들은 대부분 상업적으로 생산되고 있는 불소화 이온성 고분자 물질, 즉 DuPont의 Nafion, Asahi Glass의

Flemion, Asahi Chemical의 Aciplex 등을 사용하고 있다. 이들은 tetrafluoroethylene과 긴 가지의 말단에 술폰산 혹은 카복실산의 이온기를 가진 불소화 비닐에테르를 공중합시킨 chemical structure 1을 가지고 있다.^{7,8}



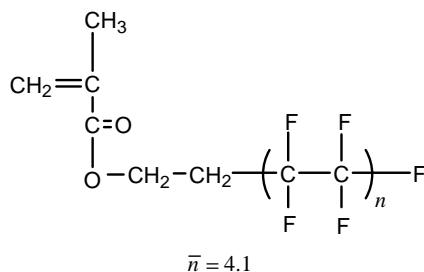
Chemical Structure 1

그런데 이들 고분자 재료들은 대부분 두께 0.1~0.3 mm 정도인 필름 형태로 판매되고 있으며, 응용가공이 되지 않는다. 따라서 용도에 적합한 모양으로 성형하여 기능을 극대화하는 것이 쉽지 않다.⁹

본 실험실에서는 Nafion을 대체하여 IPMC를 제작할 수 있으면서 응용가공이 가능한 고분자 재료를 찾기 위한 노력을 한 결과, chemical structure 2의 fluoroalkyl methacrylate(FMA), 즉 DuPont의 Zonyl TM과 아크릴산(AA)을 공중합하여 얻은 고분자로 IPMC를 제작할 수 있으며, Nafion으로 제작한 IPMC와 유사한 성능을 가짐을 보고 한 바 있다.¹⁰

[†]To whom correspondence should be addressed.

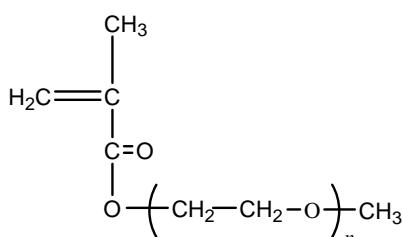
E-mail: hmjeong@mail.ulsan.ac.kr



Chemical Structure 2

IPMC의 양 전극 사이에 전압을 가하면 이온성 고분자 사슬에 공유 결합으로 고정된 음이온은 이동할 수 없으나, 이온 결합된 금속 양이온은 음극(cathode) 쪽으로 수화된 물 분자와 함께 이동하게 된다. 이에 따라 음극 쪽은 팽윤되게 되고, 양극(anode) 쪽은 수축되게 되므로 필름 형태의 IPMC는 양극 쪽으로 굽어지게 된다.^{13,11} 이러한 구동 원리에 의하면 구동성을 향상시키기 위해서는 이온 농도의 증가가 필요하다. 그러나 본 실험실에서 합성한 불소화 아크릴계 공중합체를 이용한 실험 결과에 의하면 과도한 아크릴산을 도입하여 이온 농도를 증가시키면 수분 흡수량이 급격하게 증가하여 구동 특성은 오히려 저하하였다.¹⁰

Sodium montmorillonite는 판상의 silicate 음이온 층 사이에 Na^+ 이온이 존재하는 이온 농도가 아주 높은 무기 고분자이다.^{12,13} 본 연구에서는 sodium montmorillonite를 고분자 매트릭스에 분산시킨 복합재료를 제조하면 기계적 강도와 고분자 매트릭스에 분산된 이온 농도를 증가시킬 수 있다는 점에 착안하여, FMA와 AA를 공중합한 불소화 아크릴계 이온성 고분자(PFMAA) 매트릭스에 sodium montmorillonite를 분산시킨 복합재료를 제조하고, 이를 이용하여 IPMC를 제조하여 구동 특성을 조사하였다. 복합재료의 제조에는 FMA와 AA를 라디칼 공중합할 때 sodium montmorillonite를 함께 투입하여 제조하는 방법과 chemical structure 3의 poly(ethylene glycol) methyl ether methacrylate macromer가 sodium montmorillonite에 삽입된 복합재료를 먼저 만든 후¹⁴⁻¹⁶ 이를 FMA, AA와 함께 공중합시키는 방법, 두 가지를 사용하였다.



Chemical Structure 3

2. 실험

2.1 Macromer 복합재료의 제조

분자량이 562g/mol인 poly(ethylene glycol) methyl ether methacrylate macromer(PEGM, Aldrich)가 sodium montmorillonite(Southern Clay Products Inc.)에 삽입된 복합재료(PEGMM)는 메탄올/acetonitrile 혼합액(부피비 1/1) 속에서 제조하였다. 즉 혼합액 100 mL에 PEGM을 3 g 녹인 후, sodium montmorillonite 7 g을 가한 뒤 상온에서 2일간 교반하였다. 방치 후 침전물을 분리하고, 침전물을 acetonitrile과 메탄올로 각각 세척한 후, 진공 오븐에서 상온을 유지한 채 3일간 건조하여 실험에 사용하였다.¹⁴⁻¹⁶

2.2 고분자 복합재료의 합성 및 필름 제조

FMA와 AA를 공중합한 불소화 아크릴계 이온성 고분자(PFMAA) 매트릭스에 sodium montmorillonite를 분산시킨 복합재료는 sodium montmorillonite 혹은 위에서 제조한 macromer 복합재료의 존재 하에서 FMA와 AA를 괴상 공중합하여 제조하였다. 중합은 0.3 phr의 2,2'-azobisisobutyronitrile(Aldrich)을 라디칼 개시제로 사용하여, 60 °C, 질소 기류 하에서 행하였다. 중합물은 잘게 부수어 메탄올 속에서 교반하는 방법으로 수차례 세척한 후 60 °C에서 진공 건조하였다. 합성 recipe, 시료명, 합성된 복합재료의 조성 등은 Table 1에 나타내었다.

합성한 복합재료는 165 °C에서 압축 성형하여 두께 0.16 mm의 필름 형태로 만들어 IPMC의 제조에 사용하였다.

2.3 IPMC의 제조

필름 양면에 백금 전극을 형성시킨 불소화 아크릴계 이온성 고분자-백금 복합재료(ionic acrylic copolymer-platinum composite, IPMC)는 화학 환원법으로 제조하였다.^{11,17} 압축성형한 필름을 이온을 제거한 초순수를 사용하여 수차례 세척하고, 상온의 초순수에 2일간 담구어 팽윤시킨 뒤, 약 10²M 농도로 tetraammine platinum(II) chloride hydrate, Pt(NH₃)₄Cl₂ · xH₂O (Aldrich)를 초순수에 녹인 50 °C 수용액에 3시간 담구어 카복실산기의 H⁺이온을 백금 칙이온으로 교환하였다. 교환된 백금 칙이온은 NaBH₄(Aldrich)를 5 wt%로 녹인 수용액으로 40 °C에서 환원시켜 백금이 필름 표면에 석출된 IPMC를 제조하였다. 백금 칙이온 교환과 환원 조작은 4차례 반복하여 충분한 두께의 백금이 표면에 석출되도록 하였으면, 3, 4번째의 환원 시에는 온도를 60 °C까지 높였다.

2.4 측정

합성한 공중합체 중 성분 단량체의 조성을 확인하기 위하여 핵자기공명분석(¹H-NMR)을 Varian Plus 300 MHz NMR로 상온에서 하였다. 고분자는 trifluoroacetic acid에 녹여 측정하였다.

복합재료 중의 sodium montmorillonite 함량은 열중량분석법으로 행하였다. 즉, TA Instrument의 열중량 분석기(TGA 951)로 공기 분위기에서 10 °C/min 속도로 700 °C까지 가열한 후 잔류양을 측정하여 시료 중 sodium montmorillonite의 함량을 계산하였다.

Table 1. Acrylic Copolymer Composites Used in This Study

	Feed composition (weight ratio)				Polymer composition (weight ratio)			
	FMA	AA	Sodium montmorillonite	PEGM	FMA	AA	Sodium montmorillonite	PEGM
ZAN0	70.00	30.00	-	-	82.00	18.00	-	-
ZAN3	70.00	30.00	3.00	-	79.89	20.11	3.96	-
ZAN7	70.00	30.00	7.00	-	86.05	13.95	8.66	-
ZAP3	70.00	30.00	2.46	0.54	88.83	11.17	2.35	0.67
ZAP7	70.00	30.00	5.73	1.27	79.75	20.25	4.97	1.14

X-선 회절분석은 X-ray diffractometer(XPERT, Philips)로 Cu $K_{\alpha}(\lambda = 1.54 \text{ \AA})$ 선을 사용하여, 회절각을 1.21로부터 1.2 °/min로 증가시 키면서 행하였다.

압축성형한 필름의 인장률성은 필름을 25 °C 초순수에 2일간 담궈 팽윤시킨 후 인장시험기(Instron 4411)를 사용하여 측정하였다. 가로 10 mm, 길이 30 mm, 두께 0.16 mm인 시편을 사용하여, 인장속도 10 mm/min로 측정하였다.

압축성형한 필름과 IPMC의 수분흡수량은 다음 식(1)을 이용하여 계산하였다. 이 식에서 W_{wet} 는 시료를 25 °C 초순수에 2일간 담궈 팽윤시킨 뒤의 무게이고, W_{dry} 는 팽윤한 시료를 다시 80 °C 진공오븐에서 2일간 건조한 후의 무게이다.⁵

$$\text{Water uptake (g-water/100 g-dry sample)} =$$

$$\frac{W_{\text{wet}} - W_{\text{dry}}}{W_{\text{dry}}} \times 100 \quad (1)$$

IPMC의 단면과 표면의 모폴로지는 건조한 상태에서 시료에 금을 sputtering한 뒤 주사전자현미경(SEM, Jeol JSM 820)으로 관찰하였다. 단면은 액체질소로 냉각한 뒤 파쇄한 시료의 단면을 관찰하였다.

Figure 1에 나타낸 장치를 사용하여 한 방향으로 4 V의 전위를 가하거나 1 Hz로 +2V, -2V를 번갈아가면서 IPMC에 부가하는 경우 전류와 굴곡 변형 정도를 측정하였다.^{3,5} IPMC는 폭 6 mm의 리본 모양으로 잘라 한쪽 끝을 장치에 고정하여 전압을 가하고 다른 쪽 끝은 전압에 의해 좌우로 움직이도록 하여 움직이는 정도를 레이저로 측정하였다. 구동하는 리본의 길이는 25 mm로 하였고, 끝에서 5 mm 지점에서 레이저로 변위를 측정하였다. 시료는 몇 차례 예비 구동한 뒤 감응 값들을 측정하여 측정값의 재현성을 높였다.

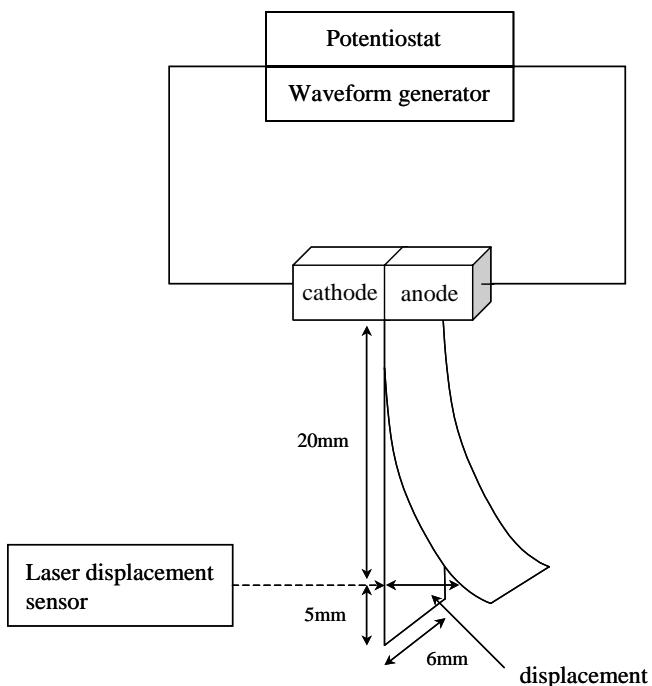


Figure 1. A schematic of displacement measuring system.

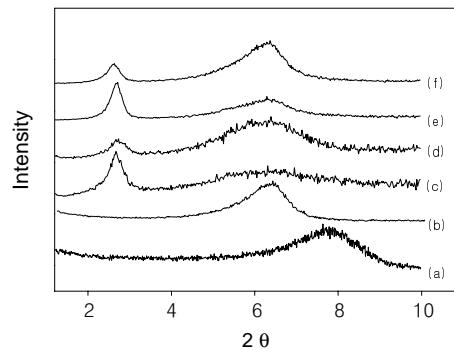


Figure 2. X-ray diffraction patterns of (a) sodium montmorillonite, (b) PEGMM, (c) ZAN3, (d) ZAN7, (e) ZAP3, and (f) ZAP7.

3. 결과 및 토론

3.1 X-선 회절 분석

Figure 2(a)와 (b)에 각각 sodium montmorillonite와 sodium montmorillonite에 PEGM이 삽입된 복합재료(PEGMM)의 X-선 분석결과를 나타내었다. Sodium montmorillonite는 제조사인 Southern Clay사의 기술 자료와 비슷하게 $2\theta=7.8^\circ$ 에서 피크를 가지는데 비해, PEGMM은 $2\theta=6.3^\circ$ 에서 피크를 가짐을 볼 수 있다. 이 결과는 macromer인 PEGM의 삽입으로 인하여 sodium montmorillonite의 층간 간격이 벌어졌음을 보여준다.¹⁴⁻¹⁶ P. Aranda 등의 연구 결과에 의하면 sodium montmorillonite의 층 사이에는 poly(ethylene oxide)가 약 0.26 g/g-montmorillonite까지 삽입될 수 있으며, 일단 삽입된 poly(ethylene oxide)는 용매에 의해 씻어낼 수 없는 것으로 보고된 바 있다.¹⁵ 본 연구에서 제조한 PEGMM 중 PEGM macromer의 함량은 Table 1에서 0.22 g/PEGM/g-sodium montmorillonite로 순수한 poly(ethylene oxide)보다 약간 적게 삽입됨을 볼 수 있다. 이는 PEGM에는 poly(ethylene oxide) 구조 외에 소수성이 큰 아크릴 구조가 포함되어 있기 때문으로 생각된다. 한편, Figure 2(e)와 (f)에서 PEGMM을 FMA, AA와 공중합시켜 제조한 ZAP3과 ZAP7도 PEGMM과 비슷한 위치에서 X-선 회절 피크를 가짐을 볼 수 있으며, 이 결과는 공중합체 내에서도 sodium montmorillonite는 대부분 poly(ethylene oxide) 가지가 삽입된 구조를 유지함을 보여준다. 이에 반해 FMA와 AA를 공중합할 때 sodium montmorillonite 자체를 투입하여 제조한 ZAN3과 ZAN7은 $2\theta=5\sim8^\circ$ 범위에 분포하는 비교적 넓은 X-선 회절 피크를 가짐을 볼 수 있다 (Figure 2(c)와 (d)). 이 결과는 공중합체 내에 PEGM 반복단위가 없는 경우는 고분자 매트릭스 중에 sodium montmorillonite가 여러 가지 다양한 형태로 분산되어 있음을 보여준다.

3.2 수분흡수량

서론에서 기술한 바와 같이 IPMC의 구동에는 물분자의 역할이 중요하므로 본 실험에 사용한 고분자 복합재료를 압축성형한 필름과 이를 사용하여 제조한 IPMC의 수분흡수량을 측정하여 Table 2에 나타내었다. 필름의 경우, ZAN3와 ZAP3은 sodium montmorillonite가 포함되지 않은 ZAN0에 비해 수분흡수량이 적은데 이는 Nylon 6/montmorillonite nanocomposite에서도 관찰된 바와 같이 판상의 silicate가 수분의 필름 내부로의 확산을 방해하기 때문으로 생각된다.¹⁸ 그러나 ZAN7과 ZAP7은 ZAN0보다 수분흡수량이 오히려 많은데, 이는 sodium montmorillonite 자체가 친수성이므로 sodium montmorillonite의 양이 많은 경우는 재료 전체에 친수성 영역이 증가되는 효과가

우선적으로 작용하기 때문으로 생각된다. 압축성형한 필름을 사용하여 화학적 환원법으로 IPMC를 제조하는 과정에서 필름이 크게 팽윤됨을 관찰할 수 있었는데, 이는 -COOH기가 극성이 큰 -COO⁻Na⁺로 변이되고 Na⁺이온에 물이 수화됨에 따른 것으로 생각된다.^{19,20} Table 2에서 IPMC가 필름보다 훨씬 많은 수분흡수량을 가짐을 확인할 수 있다. IPMC의 경우는 대체로 sodium montmorillonite가 약간의 수분흡수량을 ZAN0에 비해 증대시키는 효과가 있으나, 함량에 따른 변화는 뚜렷하지 않음을 Table 2에서 볼 수 있다.

3.3 인장물성

고분자 복합재료를 압축 성형한 필름을 25 °C 물 속에 2일간 담궈 팽윤시킨 뒤 측정한 stress-strain 곡선을 Figure 3에, 이로부터 얻어지는 정량적인 인장물성을 Table 3에 나타내었다. ZAN0은 연한 고분자의 물성을 가지나, 일반적인 복합재료에서처럼^{21,26} ZAN3과 ZAP3은 sodium montmorillonite의 보강효과에 의해 ZAN0에 비해 모듈러스가 증가됨을 알 수 있다. 그러나 ZAN7은 ZAN3보다 ZAP7은 ZAP3보다 모듈러스가 감소함을 볼 수 있는데, 이는 수분흡수량의 증가에 의한 팽윤(Table 2 참조)으로 분자간 인력이 감소함에 의한 것이 한 원인으로 생각된다.

Table 2. Water Uptake of Film and IPMC

Sample	Water uptake (g-water/100 g-dry sample)	
	film	IPMC
ZAN0	22.3	67.2
ZAN3	14.7	78.0
ZAN7	25.0	68.7
ZAP3	21.2	76.1
ZAP7	35.7	66.1

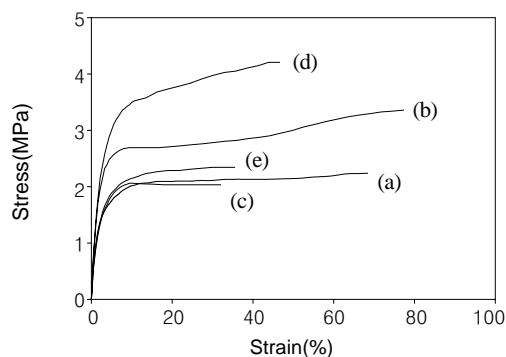


Figure 3. Stress-strain curve of wet acrylic copolymer film ; (a) ZAN0, (b)ZAN3, (c)ZAN7, (d) ZAP3, and (e)ZAP7.

Table 3. Tensile Properties of Wet Acrylic Copolymer Films

Sample	Tensile modulus (MPa)	Tensile strength at break (MPa)	Elongation at break (%)
ZAN 0	0.43	2.23	68
ZAN 3	1.20	3.37	78
ZAN 7	0.61	2.03	33
ZAP 3	1.02	3.63	46
ZAP 7	0.61	2.37	34

3.4 모폴로지

Figure 4에 SEM으로 관찰한 IPMC의 단면 및 표면의 모폴로지를 나타내었다. Figure 4(a)의 단면 형상에서 약 2 μm 두께의 백금이 석출된 전극 층이 형성되어 있음을 관찰할 수 있다. Figure 4(b)의 표면 형상에서는 약 20 μm 크기의 영역들이 모자이크 형태로 존재함을 관찰할 수 있는데, 이는 IPMC 제조시 팽윤되었던 표면의 백금 층이 SEM 관찰을 위해 건조할 때 수축되면서 표면층이 잘게 부수어짐에 기인하는 것으로 생각된다.¹

3.5 전위에 의한 구동

Figure 5에 IPMC에 4 V의 직류 전위를 가한 경우 전류와 변위의 변화량을 도시하였는데, 전류는 급격하게 증가하였다가 감소하는 거동을, 변위는 서서히 증가하는 거동을 볼 수 있다. 이와 같이 전류와 변위 사이에 약간의 시간 지연이 있는 이유는 양이온에 수화된 물이 양이온과 함께 음극으로 움직이면 내부 응력이 유발되고 이 내부 응력에 의해 변위가 생기는 것이 순차적으로 이루어지기 때문으로 생각된다. 또, 양이온의 이동에 의해 유발되는 삼투압에 의해서 일부 물이 음극 쪽으로 추가로 움직여 변위에 기여하는 것도 한 원인으로 생각된다.

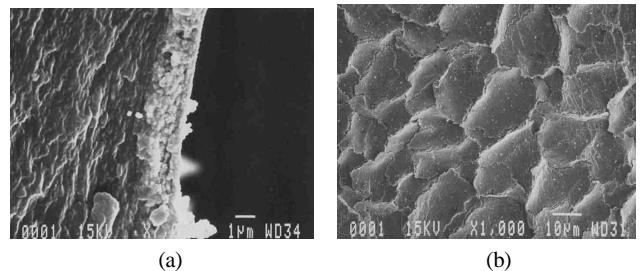


Figure 4. Scanning electron micrographs of (a) the cross-section (b) the surface of IPMC from ZAN0.

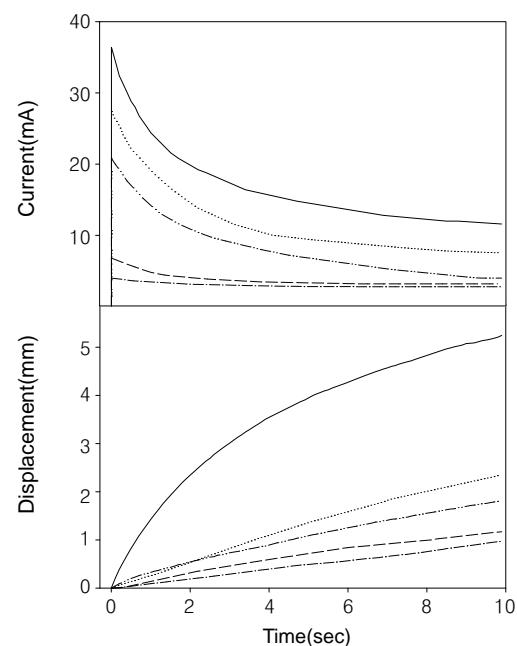


Figure 5. Initial current and displacement responses of IPMC by the applied voltage of 4V ; (—) ZAN0, (- - -) ZAN3, (- · - -) ZAN7, (---) ZAP3, (·····) ZAP7.

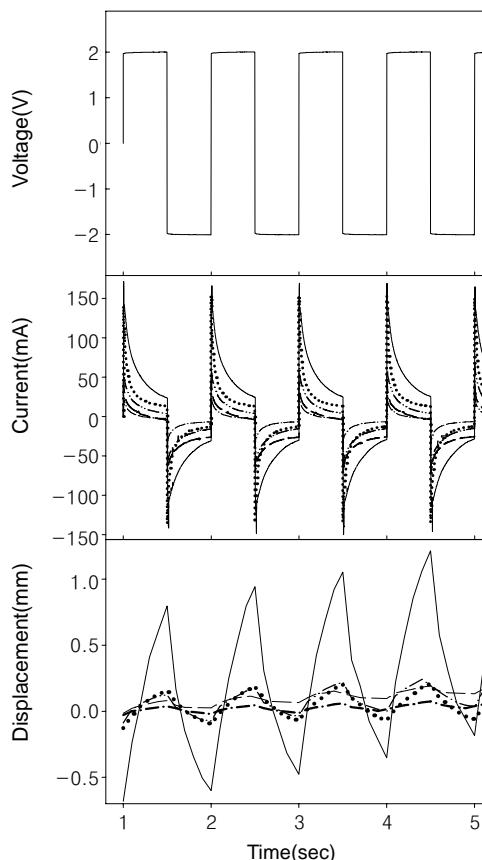


Figure 6. Current and displacement responses of IPMC by $1\text{ Hz} \pm 2\text{ V}$ step, voltage repeatedly applied; (—) ZAN0, (- - -) ZAN3, (- - - -) ZAN7, (.....) ZAP7.

인으로 생각된다.^{1,3,11} Figure 5에서 sodium montmorillonite로 개질한 ZAN3, ZAN7, ZAP3, ZAP7의 전류와 변위 값 모두가 ZAN0에 비해 작게 나타남을 볼 수 있으며, sodium montmorillonite의 함량에 따른 뚜렷한 변화 경향은 관찰할 수 없었다. 이는 sodium montmorillonite가 IPMC 내의 이온 농도를 증가시키기는 하지만, 외부전위에 의해 PFMAA의 $-\text{COO}^{\text{Na}^+}$ 기에 부착된 Na^+ 이온이 물과 함께 이동하는 것을 방해하는 작용이 있음을 보여준다.

Figure 6에는 1초 간격으로 $+2\text{ V}$, -2 V 를 번갈아 IPMC에 부가한 경우 전류와 변위의 변화량을 도시하였다. Figure 5에서와 같이 예민하게 빨리 감응하는 전류와 이보다 느리게 감응하는 변위가 나타남을 볼 수 있으며, sodium montmorillonite로 개질한 경우 전위에 의한 전류와 변위의 감응이 감소함을 관찰할 수 있다.

4. 결론

X-선 회절 분석 결과는 sodium montmorillonite 자체 혹은 macromer가 삽입된 sodium montmorillonite의 존재 하에서 FMA와 AA를 라디칼 공중합하는 경우 sodium montmorillonite에 PFMAA가 삽입된 복합재

료를 효율적으로 제조할 수 있음을 보여주었다. ZAN0과 이를 sodium montmorillonite로 개질한 복합재료를 이용하여 IPMC를 제조하고, 가해진 전압에 의해 유도된 전류와 변위 값을 측정한 결과들은 sodium montmorillonite가 IPMC 중에 이온의 농도는 증가시키나 이온의 이동을 방해하여 전류와 변위 값의 감소를 가져옴을 보여주었다.

감사의 글 : 본 연구는 보건복지부 보건의료기술진흥사업의 지원에 의하여 이루어진 것임(과제번호: 02-PJ3-PG10-31402-0001).

참고문헌

- Y. Bar-Cohen (Editor), *Electroactive Polymer(EAP) Actuators as Artificial Muscles*, SPIE Press, Washington, 2001.
- M. Watanabe, M. Suzuki, Y. Hirako, H. Shirai, and T. Hirai, *J. Appl. Polym. Sci.*, **79**, 1121 (2001).
- K. Asaka, K. Oguro, Y. Nishimura, M. Mizuhata, and H. Takenaka, *Polym. J.*, **27**, 436 (1995).
- M. Shahinpoor and K. J. Kim, *Smart Mater. Struct.*, **10**, 819 (2001).
- Y. Abe, A. Mochizuki, T. Kawashima, S. Yamashita, K. Asaka, and K. Oguro, *Polym. Adv. Technol.*, **9**, 520 (1998).
- S. Nemat-Nasser and J. Y. Li, *J. Appl. Phys.*, **87**, 3321 (2000).
- J. Y. Li and S. Nemat-Nasser, *Mechan. Mater.*, **32**, 303 (2000).
- C. Heitner-Wirguin, *J. Membr. Sci.*, **120**, 1 (1996).
- K. J. Kim and M. Shahinpoor, *Polymer*, **43**, 797 (2002).
- H. M. Jeong, S. M. Woo, H. S. Kim, B. K. Kim, J. H. Bang, S. Lee, and M. S. Mun, *Macromol. Res.*, **12**, 593 (2004).
- K. Oguro, N. Fujiwara, K. Asaka, K. Onishi, and S. Sewa, *Proc. SPIE-Int. Soc. Opt. Eng.*, **3669**, 64 (1999).
- L. Holliday (Editor), *Ionic Polymers*, Wiley, New York, 1975.
- Y. Lvov, K. Ariga, I. Ichinose, and T. Kunitake, *Langmuir*, **12**, 3038 (1996).
- R. A. Vaia, B. B. Sauer, O. K. Tse, and E. P. Giannelis, *J. Polym. Sci., Phys.*, **35**, 59 (1997).
- P. Aranda and E. Ruiz-Hitzky, *Chem. Mater.*, **4**, 1395 (1992).
- J. Wu and M. M. Lerner, *Chem. Mater.*, **5**, 835 (1993).
- T. Rashid and M. Shahinpoor, *Proc. SPIE-Int. Soc. Opt. Eng.*, **3669**, 289 (1999).
- Y. Kojima, A. Usuki, M. Kawasumi, A. Okada, T. Kurauchi, and O. Kamigaito, *J. Appl. Polym. Sci.*, **49**, 1259 (1993).
- S. Nemat-Nasser and J. Y. Li, *J. Appl. Phys.*, **87**, 3321 (2000).
- G. Xie and T. Okada, *J. Electrochem. Soc.*, **142**, 3057 (1995).
- P. C. LeBaron, Z. Wang, and T. J. Pinnavaia, *Appl. Clay Sci.*, **15**, 11 (1999).
- H. M. Jeong, K. H. Jang, and K. Cho, *J. Macromol. Sci.-Phys.*, **B42**, 1249 (2003).
- K. Y. Kim, H. J. Lim, S. M. Park, and S. J. Lee, *Polymer(Korea)*, **27**, 377 (2003).
- M. Xu, Y. S. Choi, K. H. Wang, J. H. Kim, and I. J. Chung, *Macromol. Res.*, **11**, 410 (2003).
- J. E. Lee and H. J. Kim, *Polymer(Korea)*, **29**, 177 (2005).
- M. S. Cho, S. H. Choi, J. D. Nam, and Y. Lee, *Polymer(Korea)*, **28**, 551 (2004).