

전도성 구리충전제/에폭시수지 복합체의 전기적 특성

이정은* · 박영희** · 오승민*** · 임덕점 · 오대희†

부경대학교 공업화학과 · *에이케이켐텍(주) · **포항산업과학연구원** · 이화중학교***
(2013년 8월 20일 접수; 2013년 9월 25일 수정; 2013년 9월 25일 채택)

Electrical Properties of Conductive Copper Filler/Epoxy Resin Composites

Jung-Eun Lee* · Young-Hee Park** · Seung-Min Oh
Duk-Jum Lim · Dae-Hee Oh†

*Dept. of Industrial Chemistry, Pukyong National University,
San 100, Young-dang, Nam-gu, Busan 608-737, Korea*

***AK Chem Tech Co. Ltd., Ho-dong, Nam-gu, Pohang 790-380, Korea*

****Research Institute Science and Technology,*

San 32, Hyoja dong, Nam-gu, Pohang 683-420, Korea

*****Eihwa Middle School, Jungsandong 803, Buk-gu, Ulsan 683-808, Korea*

(Received August 20, 2013 ; Revised September 25, 2013 ; Accepted September 25, 2013)

Abstract : The conductive polymer composites recently became increasingly to many fields of industry due to their electrical properties. To understand these properties of composites, electrical properties were measured and were studied relatively.

Electrical conductivity measurements showed percolation phenomena. Percolation theories are frequently applied to describe the insulator-to-conductor transitions in composites made of a conductive filler and an insulating matrix. It has been showed both experimentally and theoretically that the percolation threshold strongly depends on the aspect ratio of filler particles. The critical concentration of percolation formed is defined as the percolation threshold.

This paper was to study epoxy resin filled with copper. The experiment was made with vehicle such as epoxy resin replenished with copper powder and the study about their practical use was performed in order to apply to electric and electronic industry as well as general field.

The volume specific resistance of epoxy resin composites was 3.065~13.325 in using copper powder. The weight loss of conductive composites happened from 350°C~470°C.

Keywords : epoxy resin, conductive polymer composites, percolation phenomena, volume specific resistance, percolation threshold

†Corresponding author
(E-mail : dhoh@pknu.ac.kr)

1. 서론

일반적으로 고분자물질은 금속 재료와 달리 전기를 잘 통하지 않는 절연성이 우수하여 전기전자재료와 여러분야등에서 절연재로 주로 사용되어 왔다. 그런데 근래에 와서는 고분자 물질에 전도성을 부여하는 기능성고분자재료로 시도하는 연구가 많이 행해져 오고 있다[1-5].

상업화된 전도성 고분자 제조법으로서 절연체인 폴리머 매트릭스 내에 전도성 기능을 가진 충전제의 첨가에 의한 방법이 널리 사용되고 있지만, 전도성 기능을 높이기 위해 많은 연구가 되어오고 있다[6, 7].

전도성 무기 충전제로서는 아연, 구리, 니켈 등의 금속분말과 카본블랙이나 흑연과 같은 무기물 등이 사용되어 왔으며, 최근 전기 전자 특수 분야에서는 은과 금의 분말이 사용되고 있다. 고분자 수지로서는 열가소성 수지에서부터 열경화성 수지가 사용되고 있다[8].

전도성 복합체에 D. T. Turner와 Malliaris는 폴리에틸렌에 니켈 분말을 충전시켜 입도와 첨가량 변화에 따른 체적고유저항을 측정하고 전자현미경을 이용하여 충전 함량에 따른 도전성 분말의 분산상태를 검토하였다[9].

또한 Aharoni는 철 분말 충전 polyimide-amide 복합체[10], Turner와 Kusy는 니켈 분말 충전 우레탄 탄성체 복합체[11]를, Sanjay와 Basu[12]은 poly(methyl methacrylate)(PMMA)에 구리 분말의 첨가량에 따른 체적고유저항을 측정하였다. 특히 도전성 도료의 경우는 용제 및 충전제의 종류와 충전 함량에 따라 도전성에 큰 영향을 미치게 된다고 보고하였다. 즉, 사용한 수지의 응집으로 연속적인 도전성막을 형성하지 못하고 단계별로 도전성을 잃게 된다. 도전성 재료는 충전제와 수지의 종류에 따라 이용도가 다르다[12].

절연매트릭스에 전도성충전제를 첨가하여 생성된 복합체는 충전제가 어느 정도 낮은 농도까지는 비전도성을 나타내다가 농도를 증가시켜 어느 농도점에 도달하면 전도성을 나타내며 전도성이 갑자기 증가하는 충전제농도함수가 절연체로부터 전도성복합체로의 전이를 관투현상(Percolation phenomena)이라한다[13, 14]. 이렇게 총괄저항치가 급격히 떨어지기 시작하는 임계농도를 관투분기점(percolation threshold)이라 부르며[15, 16] 충전제의 농도증가하면서 저항치는 크게 하

락하다가 어느 농도이상에서는 저항치의 변화가 일정값에 수렴한다. 이것은 절연체인 고분자 매트릭스내에서 전도성인 금속충전제가 네트워크를 생성하여 총괄저항치가 수배승의 낮아져 전도성이 크게 증가한다[17-20].

지금까지는 고분자 복합재료의 정확한 전도기구는 알려져 있지 않고 있지만, 모든 도전성 충전제의 충전 함량에 따라 관투전이 부피분율이라고 불리는 임계 부피분율에서 전기저항 값이 부도체 영역($> 10^{10} \Omega \cdot \text{cm}$)으로부터 반도체 영역이나 도체 영역($< 10^5 \Omega \cdot \text{cm}$)으로 급격히 감소하게 되는 관투현상(Percolation phenomena)이 나타난다[14]. 그러나 사용된 도전성 충전제와 수지의 종류에 따라 복합재료의 체적저항이 다르게 되므로 산업체 응용분야별로 달라지게 된다[12].

에폭시수지는 한 분자에 2개 이상의 에폭시기를 가진 화합물로서, 우수한 기계적물성, 전기적 특성, 접착성, 치수안정성, 형상안정성, 가소성, 내마모성, 저장안정성, 기계가공성, 내수성, 내약품성등을 갖고 있을 뿐만 아니라, 에폭시기와 여러 종류의 경화제와 다양한 조합을 통하여 넓은 범위의 물성 및 공정조건 조절을 가능하게 함으로써 다양한 물성실현이 가능하기 때문에 전기전자산업분야뿐만 아니라 도로, 접착제, 자동차, 선박, 기계, 건축토목 등 다양한 분야에 응용되고 있다.

본 연구에서는 절연성인 에폭시 수지를 매트릭스로 사용하여 전도성 충전제인 구리의 금속분말을 충전시켜 전도성 도막을 제조하여 구리 함량에 따른 전기적 특성과 도막의 초미세경도, 미세구조, 열적 성질을 조사하였다. 또한 관투현상과 관투분기점도 관찰하였다.

2. 실험

2.1 시약 및 기기

실험에 사용된 고분자 수지는 국도화학의 에폭시 수지(YD-011X70, 에폭시 당량: 450~500, 수지함량: 70%)를 사용하였으며, 경화제로는 Goodmide계(G5022X70, 수지함량 70%)를 사용하였다. 도전성 충전제로는 그레이프형의 구리분말[(주)동양제철화학]을 사용하였다. 첨가제로는 BYK-Chemi사의 소포제(byk-320)를 사용하였으며, 증점제로는 일본 Kocisha제품의 sp-1000을

Table 1. The Materials of Conductive Composites Matrix

	epoxy resin	curing agent	viscosity improver	deforming agent	solvent
equivalents	450~500	-	-	-	-
solvent contents	30%	30%	-	-	-
products	YD-011X70	G5022X70	sp-1000	byk-320	Xylene
manufacture company	Kukdo chem.	Kukdo chem.	Koeisha	BYK-Chemie	Dongyang chem.

사용하였다. 용제로는 자이렌 1급 시약을 그대로 사용하였다. 실험에 사용되어진 매트릭스 재료들을 Table 1에 나타냈으며, 충전제의 형상을 Fig. 1에 나타내었다. 사진을 상호 비교하기 니켈과 아연을 위하여 같이 나타내었다.

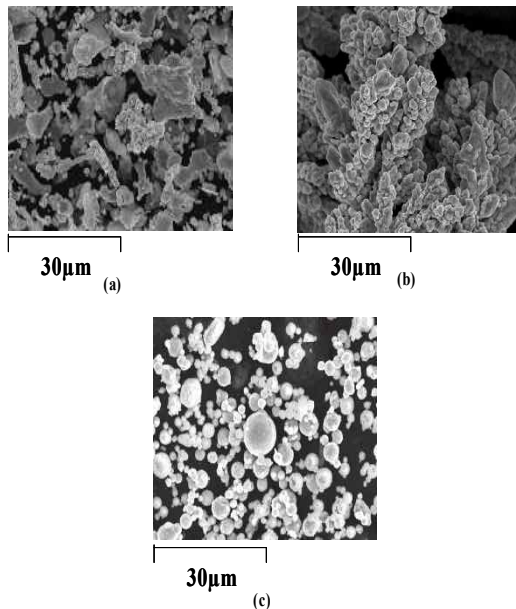


Fig. 1. Microstructure of conductive filler :
(a) nickel powder, (b) copper powder,
(c) zinc powder.

분말을 고분자 매트릭스 내에 분산시키기 위해 사용된 분산기는 독일 VMA-GETZMANN사의 GHBH-D-51580을 사용하였으며, Scanning Electron Microscopy(SEM, JSM840A)을 사용하

여 매트릭스 내에 충전제의 분산상태를 확인하였다. 또한 Lorsta-GP(MCP-T600, Mizubish)의 Four point probe를 사용하여 복합재료의 전기저항 값을 측정하였다. 아울러 Dynamic Ultra Micro Hardness Tester(日本 SHIMADZU, DUH-W201S)를 사용하여 복합재료의 초미세 경도를 측정하였으며, PERKIN ELMER사의 Thermogravimetric Analyzer TGA7 기기를 사용하여 복합체의 열적 성질도 조사해 보았다.

2.2 전도성 복합체의 제조

용제함량이 30%인 YD-011X70 에폭시 수지와 용제함량 30% 경화제인 G5022X70을 약 7:3의 비율이 되도록 혼합한 후에 첨가제로 밀도가 큰 금속 분말이 복합체에 침전하지 않도록 증점제(sp-1000)를 1.5g을 첨가하였으며 제조 후 발생하는 기포를 억제하기 위하여 소포제(byk-320)을 0.1g을 혼합하였다. 주제와 경화제 및 첨가제를 충분히 교반시켜준 후에 금속 분말을 복합재료 전체 함량에서 50~80wt%까지 주입하여 분산시켰다. 전도성 충전제의 충전 함량비는 용제함량과 증점제, 소포제 함량을 제외한 순수한 매트릭스(에폭시 수지+경화제)와의 함량비를 나타내었다.

고속 분산기를 사용하여 4000rpm으로 20분간 분산시켜 미세한 입자로 구리 분말을 분산시켰다.

사용되어진 구리금속분말의 비중은 8.96이다. 매트릭스 내에 충전제를 분산시켜 경화시키는 과정에서 고분자 수지보다 밀도가 높은 구리금속 분말이 침전하는 것을 방지하기 위하여 1.5g의 증점제를 첨가하였다. Table 2는 전도성 복합체의 충전제 조성별로 나타내었다.

Table 2. The Formulation of Copper/Epoxy Composites

sample	epoxy resin(g)	curing agent(g)	viscosity improver(g)	deforming agent(g)	solvent(g)	copper(g)
50wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	35.0
55wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	42.8
60wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	52.5
65wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	65.0
70wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	81.7
72wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	90.0
73wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	94.6
75wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	105.0
80wt% composites	24.99	10.01	1.5	0.1	15	140.0

2.3 전도성 복합체의 도막 제조

각종 충전제 및 함량별 도전성 복합재료의 도막은 Teflon으로 코팅된 금속판위에 0.7T 두께의 강판을 양옆으로 고정시킨 후 그 사이에 혼합된

복합재료를 도포한 후 유리봉으로 밀어 약 30분 간 상온에서 방치하여 예비건조시킨 다음, 50°C에서 12시간 완전 경화시켜 두께가 0.40 ~ 0.45mm의 도막을 제조하였다. Fig. 2는 실험 과

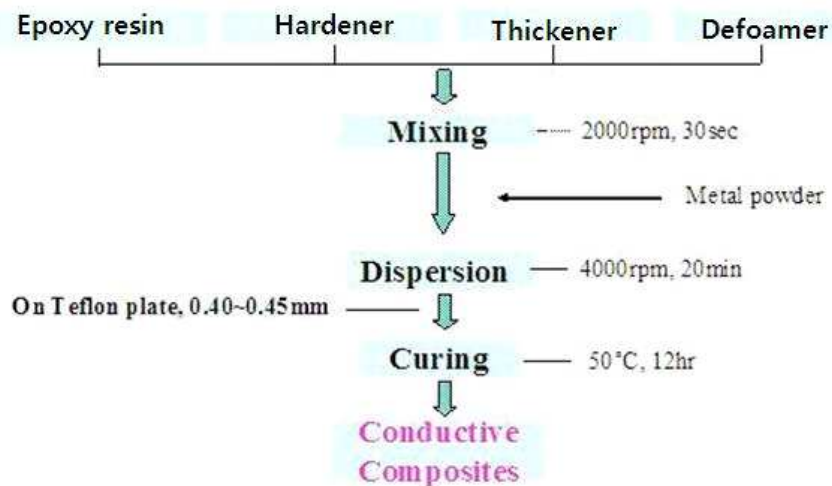


Fig. 2. Flow diagram for experimental procedure.

정을 그림으로 도식화 하였다.

2.4 전도성 복합체의 체적 고유 저항 측정

체적 고유 저항 측정은 일본 Mizubish사의 Loresta-GP(MCP-T600)를 사용하여 각종 시료 도막을 1000x1000mm 크기로 절단하여 four point probe 단자위에 올려놓은 다음 5회 반복하여 평균치를 얻었다.

2.5 전도성 복합체의 미세구조

고분자 매트릭스 내에 전도성 분말의 분산상태를 확인하기 위하여 제조된 복합체 필름을 액체 질소에 냉각시킨 후 절단하여 파단면을 SEM으로 관찰하였다.

2.6 전도성 복합체의 초미세경도

전도성 복합체의 경도를 알아보기 위하여 시료를 150x150mm로 절단하여 Dynamic ultra hardness tester(日本 SHIMADZU, DUH-W201S)를 사용하여 경도를 측정하였다. Loading time은 1(0.145000[gf/sec])로 하였고, DHT각도는 115°, Test force는 1.000[gf]로 하여 1개의 시료에 5회 반복 측정하여 평균값을 구하였다.

2.7 전도성 복합체의 열적 성질 측정

복합체 도막의 열적 안정성은 PERKIN ELMER사의 Thermogravimetric Analyzer TGA7을 사용하여 질소분위기에서 50°C~700°C 까지 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 구리/에폭시수지 복합체의 체적 전기 저항

Fig. 3에서 보는바와 같이 구리/에폭시 복합체의 경우 epoxy 매트릭스 내 구리 분말의 함량비가 50~80wt% 일 때 체적 전기 저항은 $5.00 \times 10^6 \sim 1.65 \times 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ 의 범위를 나타내었다.

에폭시 매트릭스 내의 구리분말의 함량비가 증가 할수록 체적 전기 저항 값은 감소함을 알 수 있다. 구리/에폭시 복합재료의 분말의 함량비가 70wt%까지는 $10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 정도의 비교적 높은 저항 값을 나타내었다.

구리/에폭시 복합재료의 함량비가 70wt% 이상의 조성부터 lower 관투전이 영역이 나타나기 시작했다. 함량비가 70~75wt% 사이까지의 조성

에서는 전기 저항 값이 급격히 감소하다가 함량비가 75wt% 지점부터는 입자와 네트워크 내에 전도 입자의 수가 두 번째 임계점인 upper 관투전이 영역에 도달하게 되었다. 75wt% 이상의 조성에서는 충전제 네트워크의 수만 증가하므로 전기 저항의 변화는 완만한 곡선을 보여준다. 이것은 관투이론[21, 22]에 의하면 전도성물질이 절연성 물질속에 있을 때 전기전도성 물질이 연속적으로 위치하여 입자의 금속사슬모양의 네트워크를 형성하여 전자의동이 용이하여 전도성이 급속히 증가하고 또한 Yu 등이 보고한 올레핀중합체에 카본블랙을 첨가하였을 때도 유사한 현상이 관찰되었다[16].

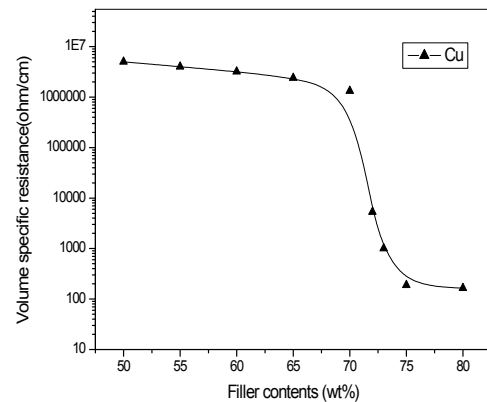


Fig. 3. Volume specific resistance versus filler contents for epoxy and copper powder.

3.2 구리/에폭시수지 복합체의 미세구조

Fig. 3에서 언급한 구리 분말 함량 70% 부근에서 급격한 체적전기저항을 설명하기 위하여 복합체의 파단면을 SEM을 이용하여 관찰하였으며 그 결과를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 (a)와 (b)는 각각 구리분말의 함량이 62wt%와 70wt%에 대한 이미지 사진이며 이들은 저항 값이 높은 관투전이(percolation threshold) 이하의 함량에 해당한다. 그리고 (c)는 분말의 함량이 73wt%로 관투전이 영역상에 위치하고 있다. 그리고 (d)와 (e)는 각각 저항 값이 낮은 관투전이 이상의 함량에 해당하는 75wt%와 80wt%의 복합체에 대한 것이다. 모든 함량에서 매트릭스 내에 그레이프형의 구리 분말이 비교적 고르게 분산되어 있으며, Fig. 1의 구리분말 사진과 비교

해 보면 입자의 크기가 확실히 작아져 있다. 이는 본 연구에서 사용한 분산 방법이 매우 효과적임을 입증하는 결과이다. 전체적으로 충전제의 함량이 증가할수록 매트릭스 내에 충전제가 차지하는 면적이 넓어짐을 알 수 있다. 특히 관투전이 이하의 함량에 해당하는 (a)와 (b)에서는 입자들이 서로 떨어진 상태로 위치하고 있으며, 관투전이 영역상의 (c)에서 입자간의 거리가 가까워지고, 그 이상의 함량인 (d)와 (e)에서는 거의 입자간에서 서로 접촉한 상태를 확인할 수 있다. 따라서 분말의 함량이 75wt% 이상 증가하면 분말 간의 간격이 좁아지고 서로 접촉하여 전자의 이동이 용이하여 저항 값이 떨어진 것으로 판단된다.

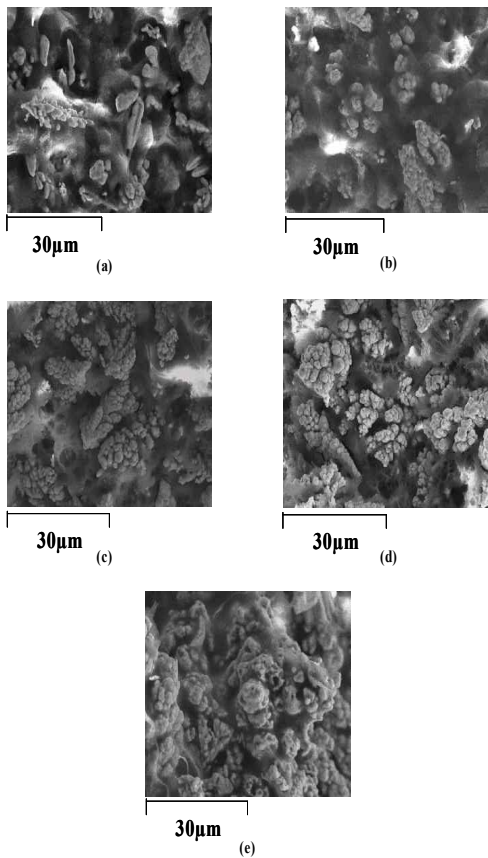


Fig. 4. The Micrographs of copper/epoxy composites by observed Scanning Electronic Microscopr(SEM).
 (a) 62wt% (b) 70wt% (c) 73wt%
 (d) 75wt% (e) 80wt%.

Fig. 5는 Back scattered image를 나타내는 것으로 검은 부분은 매트릭스이고 흰 부분은 충전제로서 매트릭스와 분말의 명암이 확연히 틀림으로써 매트릭스 내 분말의 분산된 모양을 정확히 식별 할 수 있다.

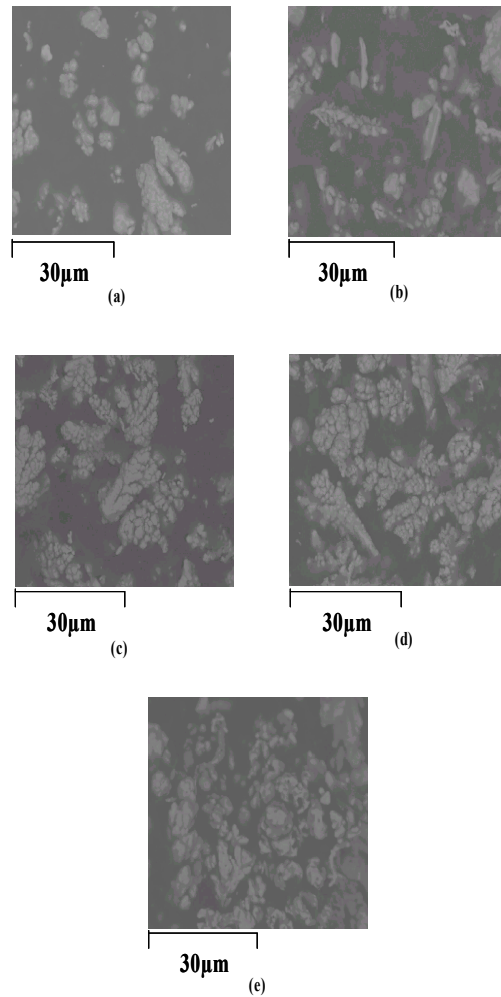


Fig. 5. SEM micrographs of copper/epoxy composites(BSI) :
 (a) 62wt% (b) 70wt% (c) 73wt%
 (d) 75wt% (e) 80wt%.

3.3 구리/에폭시수지 복합체의 초미세경도

Fig. 6은 구리/에폭시 복합체의 초미세경도를 나타내는 것이다. 그림에서 보는바와 같이 고분자 매트릭스 내에 구리분말의 함량이 증가 할수록 복합체의 미세경도도 서서히 증가함을 알 수 있

다. 구리/에폭시 복합체는 미세경도 값이 매트릭스 내 분말 함량 50~80wt%에서 3.065~13.325를 나타내었다. 특히 분말 함량이 65wt%에서 76wt% 사이에서 경도가 급격히 증가하는 모습을 볼 수 있다. 이는 구리/에폭시 복합체에서 전기저항 값이 급격히 변하는 lower 관투전이 영역과 upper 관투전이 영역에서의 함량비와 흡사하다. 이는 고분자 매트릭스 내에 분산되어 있는 구리 분말 간의 보강 효과에 의해 경도가 증가한 것으로 생각되어진다.

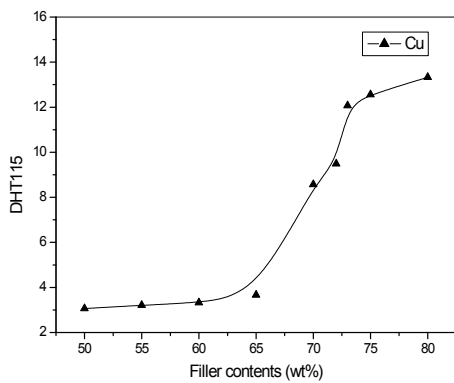


Fig. 6. Microhardness test for copper/epoxy composites.

3.4 구리/에폭시수지 복합체의 열적 성질

Fig. 7은 열적 안정성을 보기 위한 TGA 그래프이다. 그림에서 보는바와 같이 370°C까지는 복합체가 어느 정도의 안정을 유지하다가 약 370°C에서 470°C사이에 급격히 무게가 감소함을 알 수 있다. 그러나 다시 470°C이상의 온도에서 온도가 증가함에 따라 무게 감량비가 변하지 않고 일정함을 알 수 있다.

구리분말 함량 80wt%인 복합체의 경우 약 18wt%의 무게 감량이 생겼으며 75wt% 복합체는 21wt%, 분말 함량 72wt% 복합체는 22wt%, 분말 함량 70wt% 복합체는 24wt%, 분말 함량 65wt% 복합체는 약 27wt%의 무게 손실이 발생하였다.

이는 370°C에서 470°C사이에서의 무게감량은 고분자의 무게 감량이며 450°C 이후의 무게는 구리 분말의 무게인 것으로 판단되어진다.

니켈/에폭시 복합체의 경우와 마찬가지로 비슷한 온도에서 무게 손실이 발생하는 것으로 미루어 볼 때 370°C ~ 470°C에서의 무게 손실은 에폭

시 수지의 무게 손실로 보여진다.

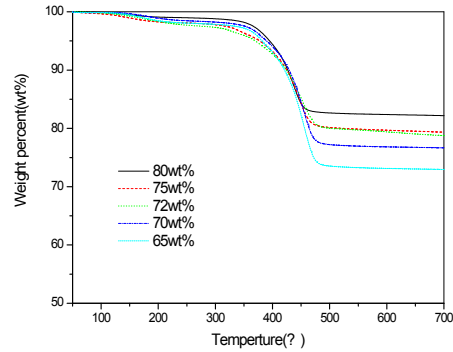


Fig. 7. TGA diagram for copper/epoxy composites.

4. 결론

절연체인 에폭시 수지에 전도성 충전제인 구리 분말을 수지 내에 분산시켜 전도성 복합재료를 제조하였다. 충전제의 함량별 체적 전기저항과 미세경도, 미세구조, 열적 성질 등을 조사하였다.

구리/에폭시수지 복합체의 경우에는 매트릭스 내 분말 함량이 늘어날 때 약 $5.00 \times 10^6 \sim 1.65 \times 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ 범위의 체적 전기 저항 값이 나타났다. 분말 함량이 70wt%일때 lower 관투전이 영역이 발견되었으며 분말 함량 75wt%에서 upper 관투전이 영역이 나타났다. 구리/에폭시수지 복합체의 초미세 경도는 함량의 증가에 따라 3.065~13.325의 범위를 나타내었다. 이 역시 구리 분말의 함량이 증가함에 의한 보강효과에 의해 경도 또한 증가한 것으로 보여진다.

구리/에폭시수지 복합체의 열적 성질은 370~470°C의 온도 범위에서 고분자인 에폭시 수지의 열분해로 인해 무게 손실이 일어난 것으로 보인다.

구리금속분말의 영향보다 에폭시 매트릭스의 영향을 많이 받는 것으로 생각되어진다.

REFERENCES

1. D. Kumar and R. C. Sharma, Advances in conductive polymers, *Eur. Polm, J.*, **43**[8],

- 1033 (1998).
2. Joseph Jang-Grodzinski, Review Electronically conductive polymers, *Polym. Adv. Technol.*, **13**, 615 (2002).
 3. Ye P. Mamunya, V.V. Davydenko, P. Pissis and EV Ledev, Electrical and thermal conductivity of polymers filled with metal powders, *Eur. Polym. J.*, **38**, 1887 (2002).
 4. DM Bigg, Thermal and electrical conductivity of polymer materials, *Adv. Polym. Sci.*, **119**, 1 (1995).
 5. Biing-Lin Lee, Electrically Conductive Polymer Composites and Blends, *Poly. Eng & Sci.*, **32**[2], 36 (1992).
 6. Knock-Yee Law, Organic Photoconductive Materials Recent Trends and Developements, *Chem. Rev.*, **93**(1), 449 (1993).
 7. W.A. Gazotti et al, Optical Devices Based on Conductive Polymers, in Handbook of Advanced Electronic and Photonic Materials and Devices, **10**, 53 (2001).
 8. M. Coler, Electrical Conductive Plastics, Japanese Patent 2,761,849 (Aug.1959).
 9. M. Coler, Electrical Conductive Plastics, Japanese Patent, 62, 110, 761, (Aug.1960).
 10. M. Coler, Electrical Conductive Plastics, Japanese Patent, 62, 110, 974 (Aug.1961).
 11. J. K. Jeszka, J. Ulanski and M. Kryszewski, *Nature*, **289**, 390 (1981).
 12. J. Ulanski, J. K. Jeszka, A. Tracz and M. Kryszewski, *Mater. Sci.*, **10**, 299 (1984).
 13. 6. T. A. Ezquerro, J. Martinez, and F. J. Belta Calleja, Percolation threshold of Conductive polycarbonate/carbon composites as revealed by microscopy, *J. Mat. Sci. Lett.*, **5**, 1065 (1986).
 14. V. I. Roldughin and V. V. Vysotskii, Review ; Percolation properties of metal-filled polymer films structure and mechanism of conductivity, *Progress in Organic Coatings*, **39**, 81 (200).
 15. Josef Z. Kovacs. Bala S. Velagala, Karl Schulte and Wolfgang Bauhofer, Two percolation thresholds in carbon nanotube epoxy composites, *Compos. Sci. Technol.*, **67**[5], 922 (2007).
 16. . J. Yu, L. Q. Zhang, M. Rogunova, J. Summers, A. Hiltner and E. Baer, Conductivity of Polyolefins Filled with High-Structure Carbon Black, *J. Appl. Polm. Sci.*, **98**, 1799 (2005).
 17. I. J. Young, A geometric percolation model for non-spherical excluded volumes, *J. Phys D*, **36**[6], 738 (2003).
 18. A. Celzard, E. McRae, C. Deleuze, M. Dufort and M. Furdin, Critical concentration in percolation systems containing a high-aspect-ratio filler, *Phys. Rev. B*, **53**[10], 6209 (1996).
 19. I. Balberg, CH Anderson, S. Alexander and N. Wagner, Excluded volume and and its relation to the onset of percolation, *Phys. Rev. B*, **30**[7], 3933 (1984).
 20. T. Natsuki, M. Endo and T. Takshashi, Percolation study of oriented short-fiber composites by a continuum model, *Physica A*, **352**[2-4], 498 (2005).
 21. J. Ulanski, G. Boiteux-Steffan, G. Seytre, A. Tracz, J. K. Jeszka, G. Vallet and M. Kryszewski, AC Conductivity of Polymers reticulated-doped with charge-transfer complexes, *J. Phys. D, Appl. Phys.*, **L5**. 18 (1985)
 22. J. Ulanski, R. Deltour, G. Debrue, J. K. Jeszka, A. Tracz and M. Kryszewski, Temperature dependent conductivity of polymers reticulated-doped with charge-transfer complexes, *J. Phys. D, Appl. Phys.*, **L125**, 18 (1985) .