

## 표면개질을 이용한 폴리에틸렌 필름과 알루미늄간의 열융착

조동련<sup>†</sup> · 윤타송

전남대학교 응용화학공학부 고분자기술연구소  
(2000년 12월 13일 접수)

### Thermal Lamination of Polyethylene Film on Aluminum by Surface Modification

Dong Lyun Cho<sup>†</sup> and Ta Song Yun

Faculty of Applied Chemical Engineering and Polymer Science & Technology Research Center,  
Chonnam National University, Kwangju 500-757, Korea

<sup>†</sup>e-mail: dlcho@chonnam.chonnam.ac.kr

(Received December 13, 2000)

**요약:** 표면을 개질시켜 극성기를 도입한 다음 열융착시키는 방법으로 접착제를 사용하지 않고도 폴리에틸렌 필름과 알루미늄 판을 직접 접합시킬 수 있는지를 살펴보았다. 폴리에틸렌 필름은 산소 및 아크릴산 플라즈마로 처리하여 극성기를 도입하였으며, 알루미늄 판은 끓는 물로 처리하거나 diaminocyclohexane 플라즈마로 처리하여 극성기를 도입하였다. 폴리에틸렌 필름의 표면만을 개질시킬 경우에도 상당히 높은 접착력을 얻을 수 있었으며, 알루미늄 판의 표면까지 개질시킬 경우에는 접착시험시 폴리에틸렌 필름이 끊어질 정도로 높은 접착력을 얻을 수 있었다. 특히, 아크릴산 플라즈마로 처리한 폴리에틸렌 필름과 diaminocyclohexane 플라즈마로 처리한 알루미늄 판을 접합시킬 경우에는 필름 표면의 카르복실기와 판 표면의 아민기가 반응하여 아마이드 그룹을 형성하는 화학적 결합에 대한 가능성도 보여주었다.

**ABSTRACT:** Direct thermal lamination of polyethylene film on aluminum plate without using adhesive was tried by modifying their surfaces to have polar groups. Polyethylene film was modified by treating with oxygen or acrylic acid plasma. Aluminum plate was modified by treating with boiling water or diaminocyclohexane plasma. Fairly high adhesion strength was obtained even in the case when only the polyethylene film was modified, and adhesion strength was so high that film was broken during the adhesion test if both the film and the aluminum plate were modified. Even chemical bonding seemed to be possible when the film treated with acrylic acid was laminated on the plate treated with diaminocyclohexane plasma by forming amide linkage through the reaction between COOH groups on the film surface and NH<sub>2</sub> groups on the plate surface.

**Keywords:** surface modification, polyethylene, aluminum, plasma treatment, adhesion.

### 서 론

각종 포장재, 콘덴서 케이스 등과 같이 고분자 필름을 금속소재와 접합시켜 사용하는 경우가 많은데, 고분자 필름은 대체적으로 금속소재와 접착이 잘 되지 않기 때문에 고분자 필름을 금속소재에 효과적으

로 접착시킬 수 있는 방안이 꾸준히 연구되고 있다. 통상적으로 접착제를 사용하는 경우가 가장 많기 때문에 접착제 및 접착보조제에 대한 연구가 주로 진행되고 있으나, 고분자가 폴리올레핀과 같이 표면에너지가 매우 낮은 물질인 경우에는 접착제를 사용하기가 어렵기 때문에 고분자 필름에 접착력 향상에 필요

한 관능기를 도입시키는 연구도 활발히 진행되고 있다.

접착에 필요한 관능기를 도입하는 방법으로서는 관능기를 함유한 단량체와의 공중합, 관능기를 가지고 있는 고분자와의 블렌딩 등을 통하여 고분자 자체에 도입하는 방법과 표면처리를 통하여 필름의 표면에만 도입하는 방법이 있는데, 후자의 경우 필름 자체의 물성에 별 영향을 끼치지 않기 때문에 보다 큰 관심을 끌고 있다. 표면처리에는 크롬산과 같은 화학약품을 이용하여 표면을 에칭하고 산화시키는 습식방법이 사용되어 왔으나,<sup>1,2</sup> 점차로 공해를 덜 유발시키는 화염, 코로나, 저온 플라즈마, 전자빔, 이온빔 처리와 자외선 및 레이저 조사 등과 같은 다양한 건식방법이 개발되어 대체되어 가고 있다.<sup>3-9</sup> 이 외에도, 표면처리 후 특정한 관능기를 표면에 그래프팅시키는 방법이나 실란계, 티탄계, 크롬계 등의 커플링제를 이용하는 방법이 사용되고 있다.<sup>10,11</sup>

정전기 작용, 화학 결합, 기계적 맞물림, 상호 확산 등이 없는 시스템에서의 고체-고체 접착현상은 흡착 이론으로 설명되고 있다. 즉, 접착은 두 물질간의 van der Waals 힘에 의한 흡착으로 진행되며, 접착력의 척도는 다음의 식으로 얻어지는 두 물질울 분리 시키는데 필요한 단위면적당 에너지 (work of adhesion,  $W_a$ )에 의하여 결정된다.<sup>12</sup>

$$W_a = \gamma_{s1} + \gamma_{s2} - \gamma_{s1s2} \quad (1)$$

여기서  $\gamma_{s1}$ 은 고체 1의 표면에너지,  $\gamma_{s2}$ 는 고체 2의 표면에너지,  $\gamma_{s1s2}$ 는 고체 1과 고체 2 사이의 계면 에너지이다. 표면에너지  $\gamma$ 는 분산력 (dispersion force)으로 인한 표면에너지 ( $\gamma^d$ )와 극성력 (polar force)으로 인한 표면에너지 ( $\gamma^p$ )로 나눌 수 있으며,  $\gamma = \gamma^d + \gamma^p$ 이다. 또한, 각 물질 사이의 계면에너지  $\gamma_{12}$ 는 각 물질들의 표면에너지와 대략 다음과 같은 관계식을 갖는다.

$$\gamma_{12} = \gamma_1 + \gamma_2 - 2(\gamma_1^d \gamma_2^d)^{1/2} - 2(\gamma_1^p \gamma_2^p)^{1/2} \quad (2)$$

이 관계식을 이용하면 식 (1)은 다음과 같이 정리된다.<sup>13</sup>

$$W_a = 2(\gamma_{s1}^d \gamma_{s2}^d)^{1/2} + 2(\gamma_{s1}^p \gamma_{s2}^p)^{1/2} \quad (3)$$

따라서, 접착시키고자 하는 시편표면층의 극성을 높여주면  $\gamma_{s1}^p$ 와  $\gamma_{s2}^p$ 가 커져서 접착력이 높아지게 된다.

본 연구에서는 접착제를 사용하여도 접합시키기가 어려운 것으로 인식되어 있는 폴리에틸렌 필름과 알루미늄 판을 표면개질시켜 극성기를 도입한 다음 열융착시키는 방법으로 접착제를 사용하지 않고도 접합시킬 수 있는 지를 살펴보았다.

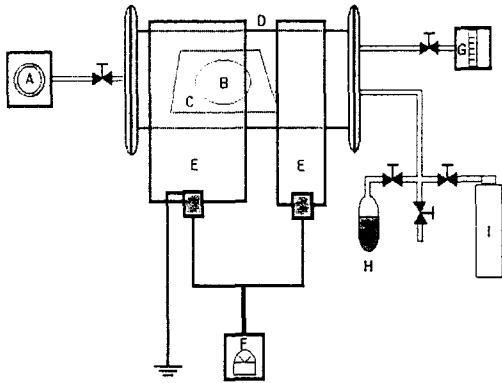
## 실 험

**재료 및 표면개질.** 본 실험에 사용한 폴리에틸렌은 25  $\mu\text{m}$  두께의 저밀도 폴리에틸렌 (대림산업) 필름이었으며, 알루미늄은 0.37 mm 두께의 순수한 알루미늄 판이었다. 알루미늄 판은 4×5 cm의 크기로 절단하여 유압 프레스로 끈게 펴서 초음파 세척기 내에서 에틸알콜과 물의 혼합용액 (1:1)으로 10분간 세척한 다음 50 °C 오븐에서 12시간 이상, 그리고 데시케이터에서 24시간 이상 상온 건조하여 사용하였다. 폴리에틸렌 필름은 5×6 cm의 크기로 절단하여 초음파 세척기 내에서 5분간 세척한 다음 데시케이터에서 24시간 이상 상온 건조하여 사용하였다.

폴리에틸렌 필름의 표면개질에는 산소 또는 아크릴산 (acrylic acid) 플라즈마 처리방법을 이용하였으며, 알루미늄 판의 표면개질에는 끓는 물 처리 또는 diaminocyclohexane (DACH) 플라즈마 처리방법을 이용하였다. 플라즈마 처리에는 자체 제작한 RF 플라즈마 반응기 (Figure 1)를 사용하였다. 폴리에틸렌 필름을 아크릴산 플라즈마로 처리하거나 알루미늄 판을 DACH 플라즈마로 처리할 경우에는 산소 플라즈마 또는 아르곤과 수소 혼합가스 플라즈마로 세정하는 전처리 과정을 거쳤다. 각 플라즈마 처리시의 공정조건 범위는 Table 1에 나타나 있다. 끓는 물 처리는 알루미늄 판을 끓는 증류수에 30분간 담그는 방법으로 시행하였다.

개질 후 폴리에틸렌 필름과 알루미늄 판 표면의 특성 및 화학적 구조변화는 접촉각 측정기 (ERMA, Model G-1)와 FTIR (Jasco, Model FT/IR-430)을 이용하여 분석하였다.

**폴리에틸렌 필름의 열융착 및 접착시험.** 폴리에틸렌 필름의 열융착에는 가열프레스 (Carver, Model C)를 이용하였으며, 융착조건은 150 °C, 450 kg/cm<sup>2</sup>,

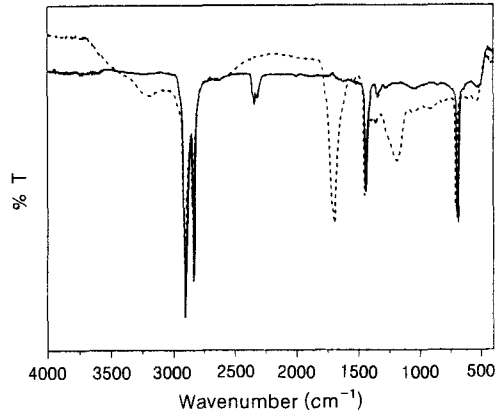


**Figure 1.** Schematic diagram of a plasma reactor for surface modification. A: vacuum pump, B: sample, C: sample holder, D: reaction chamber, E: electrodes, F, R.F power supply, G: pressure gauge, H: liquid monomer reservoir, I: gas reservoir.

2분이었다. 접착시험용 시편은 접착시험시 폴리에틸렌 필름이 쉽게 늘어나거나 끊어지는 것을 방지하기 위하여 필름 4장을 추가로 용착시켜 필름의 총 두께가  $80 \pm 5 \mu\text{m}$ 로 되도록 한 다음 2.0 cm의 폭으로 절단하여 제조하였다. 접착력은 만능 인장 시험기 (TIRA test 27025)를 이용하여 180° peel test 방법으로 측정하였다. 이 때 cross head의 속도는 10 mm/min로 유지하였다.

**결과 및 고찰**

**폴리에틸렌 필름의 표면개질 결과.** 폴리에틸렌 필름을 아크릴산 플라즈마로 처리할 경우, 폴리에틸렌 필름의 표면에 C(O)OH기를 함유한 유기박막이 적층되었다. 적층속도는 방전전력 (discharge power) 이 증가함에 따라 증가하였으며, 4.56 SCCM, 40 W의 조건에서 대략 100 Å/min 정도이었다. Figure 2



**Figure 2.** FTIR-ATR spectra of untreated (—) and treated polyethylene film with acrylic acid plasma (---).

는 아크릴산 플라즈마로 처리하기 전과 후의 폴리에틸렌 필름 표면에 대한 FTIR-ATR 스펙트럼인데, 처리 후 3400-2400, 1709  $\text{cm}^{-1}$  및 1300-1000  $\text{cm}^{-1}$  부근에서 C(O)OH의 특성 피크가 강하게 나타나고 있음을 볼 수 있다. 이에 따라, 폴리에틸렌 필름의 표면이 극성을 지니게 되어 물과의 접촉각이 92°에서 7~14°로 크게 낮아졌다.

산소 플라즈마로 처리한 표면은 FTIR-ATR로 분석하기가 용이하지 않았다. 하지만, 접촉각이 40~54°로 낮아진 것으로 보아 아크릴산 플라즈마로 처리할 때보다는 못하지만 역시 극성으로 개질되었음을 알 수 있었다.

**알루미늄 판의 표면개질 결과.** 알루미늄 판을 끓는 물로 처리할 경우에는 표면에 미세한 다공성 구조 (Figure 3 참조)와 함께 OH기가 생성되었으며, DACH 플라즈마로 처리할 경우에는 알루미늄 표면에 NH<sub>2</sub>기를 함유하고 있는 유기박막이 적층되었다. 박막의 적층속도는 아크릴산 플라즈마 처리의 경우와 마찬가지로 방전전력이 증가함에 따라 증가하였으며,

**Table 1. Conditions for Various Plasma Treatments**

parameters	O <sub>2</sub> plasma	acrylic acid plasma		DACH plasma		
		pretreatment		pretreatment		DACH
		O <sub>2</sub>	acrylic acid	Ar	H <sub>2</sub>	
flow rate (SCCM)	3.54	13.05	4.56	3.54	10.62	0.89
discharge power (W)	10~100	40	30~70	40		10~60
treatment time (min)	5	5	5~30	5		5~80

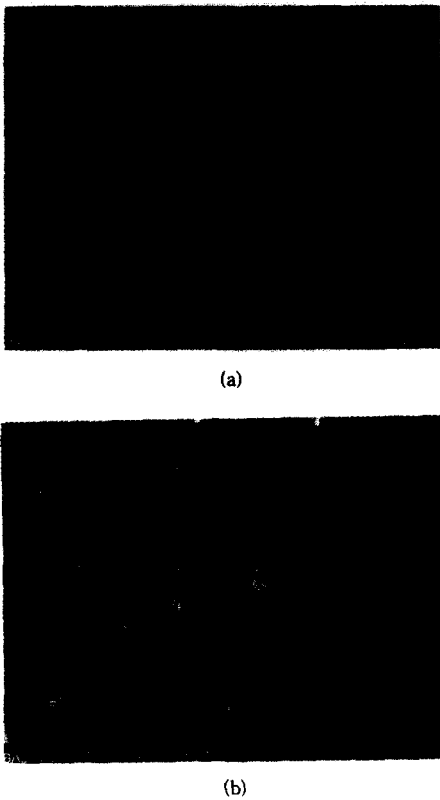


Figure 3. Scanning electron micrographs of (a) untreated and (b) treated aluminum plates with boiling water.

0.723 SCCM, 20 W의 조건에서 대략 5.0 Å/min 정도이었다. Figure 4는 처리 전과 처리 후에 알루미늄의 표면을 분석한 FTIR-RF 스펙트럼인데, 끓는 물로 처리한 표면에서는 3400 cm<sup>-1</sup> 부근에서 OH기의 특성 피크가 나타나고, DACH 플라즈마로 처리한 표면에서는 3500-3100 cm<sup>-1</sup>과 1640-1550 cm<sup>-1</sup> 부근에서 NH<sub>2</sub>의 특성 피크가 나타나고 있음을 볼 수 있다. 이에 따라, 접촉각이 69°로서 약간의 소수성을 보이던 표면이 친수성으로 변하여 끓는 물로 처리한 후에는 접촉각이 12°로, 그리고 낮은 방전전력(10 W)에서 DACH 플라즈마로 처리한 후에는 20°로 크게 낮아졌다.

표면개질에 따른 접착력 변화. 폴리에틸렌 필름은 알루미늄 판과의 접착력이 매우 낮은 열융착 방법으로 접착시키기 쉽지 않았다. 하지만, 산소 및 아크릴

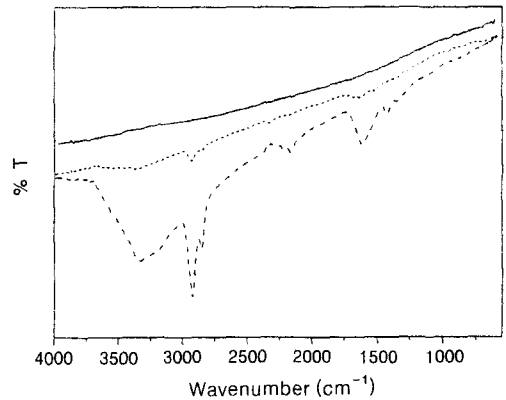


Figure 4. FTIR-RF spectra of untreated (—) and treated aluminum plates with boiling water (···) and diaminocyclohexane plasma (---).

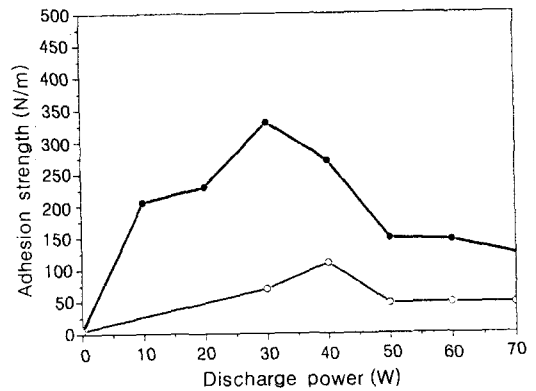
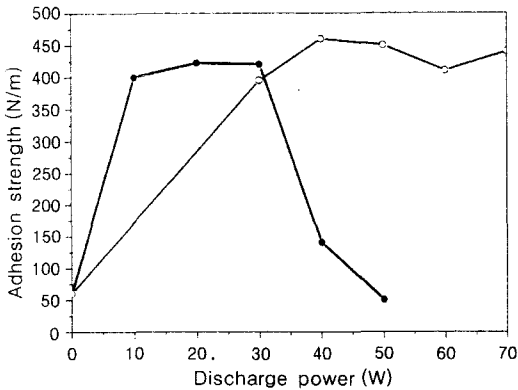


Figure 5. Adhesion strengths of thermally laminated polyethylene film treated with oxygen (●) and acrylic acid plasma (○) on aluminum plate as a function of discharge power.

산 플라즈마로 표면을 개질한 후에는 접착이 용이하였으며, 표면이 개질된 알루미늄 판에 접착시킬 경우에는 접착력 시험시 필름이 끊어질 정도의 높은 접착력까지도 얻을 수 있었다.

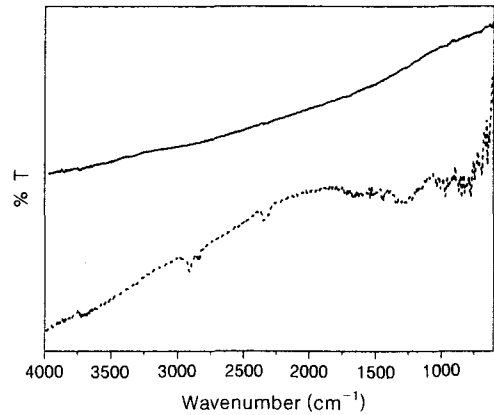
Figure 5와 6은 각각 표면개질 전의 알루미늄 판과 끓는 물로 처리한 알루미늄 판에 열융착된 각종 필름들의 접착력(450 N/m이상은 접착된 필름이 끊어진 경우임)을 보여주고 있다. 산소 플라즈마 처리 시나 아크릴산 플라즈마 처리시 두 경우 모두 방전전력이 높아짐에 따라 접착력이 증가하다가 어느 정도 이상이 되면 오히려 감소하고 있는 것을 볼 수 있는



**Figure 6.** Adhesion strengths of thermally laminated polyethylene film treated with oxygen (●) and acrylic acid plasma (○) on aluminum plate treated with boiling water as a function of discharge power.

데, 이에 대한 원인은 서로 다를 것으로 추정된다. 산소 플라즈마의 경우에는 방전전력이 높아지면 산화 반응이 촉진되어 필름 표면의 극성이 증가함에 따라 접착력이 증가하다가 너무 높은 방전전력에서는 필름 표면층의 분자들이 분해되어 약한 표면층을 형성함에 따라 접착력이 급속히 감소한 것으로 보인다. 하지만, 아크릴산 플라즈마에서는 필름의 표면에 고분자 박막이 적층되므로 방전전력이 높더라도 필름 표면층의 분자들을 분해시키지 않으므로 아크릴산 플라즈마의 경우에는 적층된 박막의 화학적 구조에서 원인을 찾아야 할 것이다.

아크릴산 플라즈마에 의하여 적층되는 박막은 방전전력이 높아질수록 함유된 C(O)OH기 등과 같은 극성기의 농도가 낮아지는 것으로 알려져 있다.<sup>14</sup> 따라서, 높은 방전전력에서 접착력이 감소한 이유는 박막의 극성이 감소한 때문으로 보인다. 하지만, 박막의 극성만을 고려한다면 방전전력이 낮을수록 높은 접착력을 보여야 하므로 낮은 방전전력에서의 실험결과를 해석하기 위해서는 박막 자체의 기계적 물성을 함께 고려해야 할 것으로 보인다. 방전전력이 충분하지 못할 경우에는 저분자량의 단일중합체들이 생성되는 것으로 알려져 있는데,<sup>14</sup> 이 경우 박막의 기계적 물성이 취약해지므로 접착시험시 접착면에서의 분리와 함께 박막 자체의 파괴가 동시에 일어날 수 있기 때문이다. 즉, 처음에는 박막의 기계적 물성 향상에 따른 긍정적인 효과가 극성기의 농도 저하에 따른 부정적

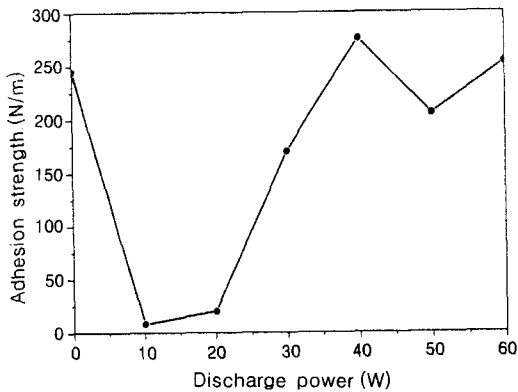


**Figure 7.** FTIR-RF spectra of aluminum plate before (—) and after (···) adhesion test.

인 효과보다 더 크게 작용하여 방전전력이 높아짐에 따라 접착력이 증가하다가, 방전전력이 어느 정도 이상을 넘어선 다음에는 기계적 물성의 향상정도가 줄어들면서 접착력이 약간 감소한 것으로 추정된다. 이와 같은 해석은 분리된 알루미늄 판의 FTIR-RF 분석결과 및 아크릴산으로 처리된 필름을 세척한 후에 용착시킨 결과가 뒷받침하고 있다.

Figure 7은 아크릴산 플라즈마로 처리된 폴리에틸렌 필름과 접착되었다가 분리된 알루미늄 판 표면의 FTIR-RF 스펙트럼을 처리 전 알루미늄 판의 FTIR-RF 스펙트럼과 비교해서 보여주고 있다. 접착 전에는 아무런 특성피크가 나타나지 않다가 접착 후 분리된 다음에는 미세하게나마 CH 및 C(O)OH기의 특성피크가 나타나는 것으로 보아 분리시 폴리에틸렌 필름에 존재하던 박막의 일부가 알루미늄 표면으로 이전되었음을 알 수 있다. Figure 5에서 아크릴산 플라즈마로 처리된 폴리에틸렌 필름이 산소 플라즈마로 처리된 필름보다 낮은 접착력을 보이는 이유도 단일중합체의 존재로 인하여 박막 자체가 쉽게 파괴된 때문으로 추정된다.

하지만, 끓는 물로 처리된 알루미늄에 열용착시킬 경우에는 아크릴산 플라즈마로 처리된 폴리에틸렌 필름의 경우에도 높은 접착력을 보이고 있는데 (Figure 6 참조), 이는 개질된 알루미늄 표면의 미세한 다공성 구조 (Figure 3 참조)와 OH기 때문으로 보인다. 즉, 열용착시 단일중합체들이 알루미늄 표면에 있는 기공속으로 밀려 들어감에 따라 단일중합체에 의한

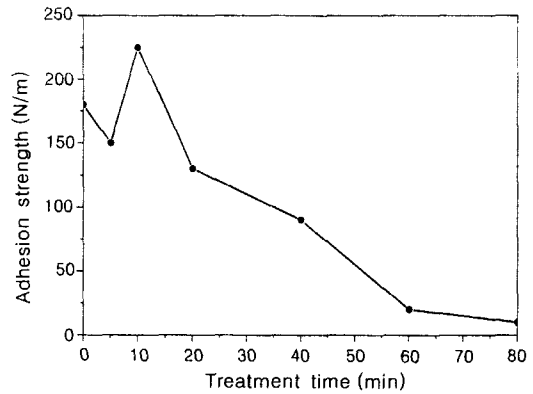


**Figure 8.** Adhesion strengths of thermally laminated polyethylene film treated with acrylic acid plasma on aluminum plate treated with DACH plasma as a function of DACH plasma discharge power.

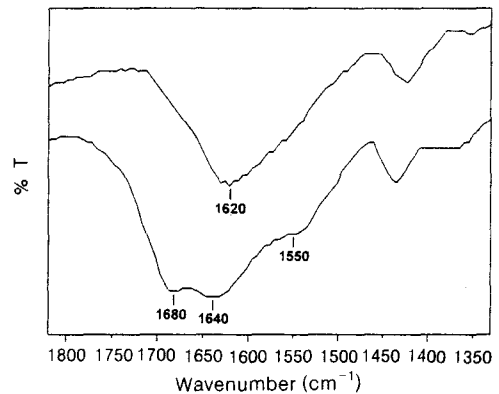
기계적 물성 약화가 감소하고, 기계적 맞물림과 알루미늄 표면의 OH기와 박막의 C(O)OH기 사이의 수소결합이 가능해짐에 따라 높은 접착력이 얻어진 것으로 추정된다.

저분자량의 단일중합체는 박막층의 다른 분자와 가교가 되어 있지 않으며 친수성이 강하기 때문에 물에 용해될 수 있다. 따라서, 아크릴산 플라즈마로 40 W에서 10분간 처리한 필름의 표면을 물로 세척하여 저분자량의 단일중합체를 제거한 다음 알루미늄 판에 용착시켜 보았는데, 접착력이 108 N/m에서 402 N/m로 크게 향상되었다. 이로써 저분자량의 단일중합체들의 존재가 접착력에 부정적인 영향을 끼친다는 것을 확인할 수 있었다.

이러한 현상은 DACH 플라즈마로 처리하여 NH<sub>2</sub>기를 도입한 알루미늄 판에 용착시킬 때도 나타났다. 도입된 NH<sub>2</sub>기가 필름 표면의 C(O)OH와 acid-base interaction 또는 화학결합을 함으로써 접착력이 크게 높아지리라 기대하였으나, Figure 8과 9에서 보는 바와 같이 40 W에서 10분간 처리한 경우에만 약간 높아졌을 뿐 처리하지 않은 알루미늄 판에 용착시킬 때보다 더 낮은 접착력을 보였다. 분리된 면을 FTIR-RF로 분석한 결과, 낮은 방전전력(10~20 W)에서 처리한 알루미늄 판에서는 유기물의 특성 피크가 나타나지 않은 것으로 보아 DACH 플라즈마에 의하여 적층된 박막이 알루미늄 판으로부터 쉽게 벗겨져서 접착력이 낮아졌음을 알 수 있었다. 하지

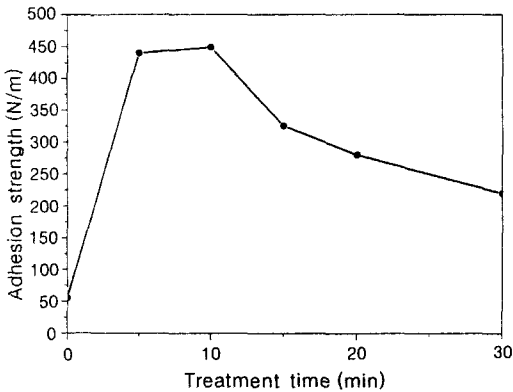


**Figure 9.** Adhesion strengths of thermally laminated polyethylene film treated with acrylic acid plasma on aluminum plate treated with DACH plasma as a function of DACH plasma treatment time.



**Figure 10.** FTIR-RF spectra of aluminum plate treated with DACH plasma before (—) and after (---) adhesion test.

만, 40 W에서 처리한 판에서는 Figure 10에서 보는 바와 같이 박막의 특성피크가 나타날 뿐만 아니라 미세하지만 1620 cm<sup>-1</sup> 부근의 NH<sub>2</sub> 특성피크가 줄어든 대신 그 왼쪽 1640~1680 cm<sup>-1</sup> 부근에서 amide 그룹의 C=O, 그리고 1550 cm<sup>-1</sup> 부근에서 NH 특성피크가 나타나면서 폴리에틸렌 필름쪽의 박막의 일부가 알루미늄 판쪽으로 이전되었으며 이전된 박막에 함유된 C(O)OH기와 알루미늄 판에 적층된 박막의 NH<sub>2</sub>기 사이에 화학적 결합이 이루어졌음을 시사하였다. 또한, 접착력이 그리 높지 않은 것으로 볼 때 이전된 물질은 저분자량의 단일중합체일 가능성이 컸다. 따



**Figure 11.** Adhesion strengths of thermally laminated polyethylene film treated with acrylic acid plasma on aluminum plate treated with boiling water as a function of treatment time.

라서, 앞의 경우와 마찬가지로 물로 세척한 다음 융착시켜 보았는데, 마찬가지로 225에서 520 N/m로 크게 향상되었다.

마지막으로, 박막을 적층시켜 접착력을 향상시키고자 할 경우에는 박막의 두께가 어느 정도 이상 되어야 하는 것을 알 수 있었다. Figure 11은 아크릴산 플라즈마로 처리한 폴리에틸렌 필름을 끓는 물로 처리한 알루미늄 판에 융착시킬 때 아크릴산 플라즈마의 처리시간에 따른 접착력 변화를 보여주고 있는데 처리시간이 5~10분 정도일 때, 따라서 박막의 두께가 500~1000 Å일 때 접착력이 가장 높은 것을 볼 수 있다. 그 이상의 두께에서는 접착력이 오히려 감소하고 있는데, 이는 일반적으로 박막의 두께에 비례하여 증가하는 것으로 알려진 박막 자체의 internal stress<sup>15</sup> 및 두께가 증가함에 따른 박막 자체의 파괴 때문으로 추정된다.

## 결 론

본 연구의 결과를 종합하여 볼 때 다음과 같은 결론을 얻을 수 있다.

1. 표면개질 방법을 이용하여 극성기를 도입하면 폴리에틸렌과 같이 접착성이 거의 없는 고분자 필름을 접착제를 사용하지 않고도 열융착 방법으로 알루미늄 판에 강하게 접합시킬 수 있다.

2. 이러한 목적의 표면개질에는 산소, 아크릴산 및

diaminocyclohexane 플라즈마 처리가 적합하며, 알루미늄 판은 끓는 물로 처리하는 방법도 이용할 수 있다.

3. 플라즈마 처리에 의한 접착력 향상 정도는 플라즈마 공정조건에 따라 크게 달라지므로 적정 공정조건을 확립하는 것이 중요하다.

4. 아크릴산 플라즈마와 같이 고분자 박막을 적층시키는 경우에는 기계적 물성이 취약한 저분자량의 단일중합체가 생성되어 약한 표면층을 형성할 수 있으므로 강한 접착력을 얻기 위해서는 사전에 이들을 물로 세척하여 제거하는 것이 중요하며, 500~1000 Å 정도의 두께를 갖도록 하여야 한다.

5. 접합시키고자 하는 두 가지 소재를 모두 플라즈마로 처리할 경우에는 화학결합에 의한 접합도 가능하다.

**감사의 글:** 본 연구는 1997 전남대 연구소육성과 예비와 1999 광주·전남 테크노파크 기술고도화 사업비의 지원을 받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

## 참 고 문 헌

1. S. Wu, "Polymer Interface and Adhesion", chap. 9, M. Dekker, New York, 1982.
2. L. E. Perrins and K. Pettett, *Plastics and Polymers*, **39**, 391 (1971).
3. S. Nowak, H.-P. Haerri, L. Schlapbach, and J. Vogt, *Surface and Interface Analysis*, **16**, 418 (1990).
4. E. Papirer, D. Wu, G. Nanse, and J. Schultz, in "Chemically Modified Surfaces", H. A. Mottola and J. R. Steinmetz Eds., Elsevier, Amsterdam, 1992.
5. M. Strobel, C. Dunatov, J. M. Strobel, C. S. Lyons, S. J. Perron, and M. C. Morgen, *J. Adhes. Sci. Technol.*, **3**, 321 (1989).
6. L. J. Gerenser, *J. Adhes. Sci. Technol.*, **1**, 303 (1987).
7. L. Sydney and S. R. Ebner, US 4543268 (1985).
8. P. Bodo and J.-E. Sundgren, *J. Appl. Phys.*, **60**, 1161 (1986).
9. T. Zeiler, P. Pfeffer, M. Kurner, and H. Munstedt, *Macromol. Symp.*, **126**, 267 (1997).
10. C. Decker and K. Zahouily, *Macromol. Symp.*, **129**, 99 (1998).
11. E. P. Plueddmann, "Silane Coupling Agent", M.

- Dekker, New York, 1982.
12. W. Gutowski, "Fundamentals of Adhesion", Plenum Pub. Co., New York, 1991.
  13. D. H. Kaelble and K. C. Uy, *J. Adhesion*, **2**, 50 (1970).
  14. D. L. Cho, P. M. Claesson, C.-G. Golander, and K. Johansson, *J. Appl. Polym. Sci.* **41**, 1373 (1990).
  15. H. Yasuda, "Plasma Polymerization", Academic Press, New York, 1985.