「접착 및 계면」
논문(original article)
제3권 (제3호), 2002

변성 폴리에틸렌의 제조 및 물성 : 2. 필름의 물성 및 열접착 특성

이 재 흥† · 이 상 헌

Preparation and Properties of Modified Polyethylenes : 2. Physical and Heat-Seal Properties of Films

Jae Heung Lee† and Sang-Hun Lee

요 약

Poly(ethylene-co-methylacrylate)(PEMA)를 KOH, 암모니아 수용액과 반응시켜 측쇄에 -COOK, -$CONH_2$, -COOH를 갖는 변성 폴리에틸렌 수분산액을 제조하였다. 수분산액을 캐스팅하여 필름으로 제조한 후 열적, 기계적, 열접착 특성을 조사하였다. 변성 폴리에틸렌 필름은 열이력에 따라 유리전이온도는 변화하지 않았으나 용융피크는 큰 변화가 관찰 되었다. 1차 가열 시 3개의 용융피크가 관찰되었으나 2차 가열 시에는 1개의 용융 피크가 관찰되었다. 아마이드 그룹의 함량을 증가시키면 인장 모듈러스가 증가하였으며 -COOK를 증가시키면 측기 중의 70 몰% 부근에서 최저의 인장강도를 나타내었다. 변성 폴리에틸렌 필름의 열접착은 폴리에틸렌 필름 보다 낮은 약 80℃부터 가능하였으며 90℃에서의 열접착 강도는 측기 중 약 70 몰% -COOK 농도에서 최저값을 나타내었다.

ABSTRACT

The modified polyethylene(m-PE) films were prepared from aqueous dispersions which were synthesized by reacting poly(ethylene-co-methylacrylate) with aqueous KOH and ammonia solution to attach -COOK, $CONH_2$ and COOH as pendent groups in the polyethylene backbones. Thermal, tensile and heat-seal properties were measured to investigate the effect of the pendent groups. Endothermic peaks on DSC curves were affected by the thermal history of the samples and a melting peak was observed at around 86℃ on the second heating curve while three melting peaks were shown on the first heating curve. A minimum value of tensile strength was shown at 70 mole% of COOK based on pendent groups. Tensile modulus increased with increasing the amide content in pendent groups. The m-PE films were heat-sealed at lower temperature than LDPE films and showed a minimum

• 2002년 7월 6일 접수(received), 2002년 9월 6일 채택(accepted)
• 한국화학연구원 화학소재연구부(Advanced Materials Division, Korea Research Institute of Chemical Technology, P. O. Box 107, Yuseong, Daejeon 305-600, Korea)
†주저자(Corresponding author): e-mail: jahlee@krict.re.kr

heat seal strength at around 70 mole% COOK content in pendent groups.

KEYWORDS : MODIFIED POLYETHYLENE, IONIC POLYMER, PENDENT GROUP, HEAT-SEAL, TENSILE PROPERTY

1. 서 론

폴리에틸렌 같이 탄화수소로 이루어진 고분자의 측쇄에 소량의 이온 그룹을 도입하면 열접착성, 투명성, 저온충격성, 용융강도, 내마모성 등이 크게 개선되어 포장재, 코팅제, 발포체용 개질제, 고분자 얼로이용 상용화제 등의 용도로 이용되고 있다. 대표적인 제품으로는 미국 DuPont사에서 1960년대 중반에 「Surlyn」이란 상품명으로 시판을 시작한 에틸렌계 아이오노머를 들 수 있다.[1-5] 「Surlyn」은 에틸렌과 메타아크릴산을 공중합시키고 중합된 폴리에틸렌-메타아크릴산 공중합체의 메타아크릴산을 알칼리, 금속 산화물 등으로 중화시켜 카르복실산 염으로 만든 제품으로서 카운터 이온인 금속 이온으로는 Na, Zn 등의 1 또는 2가 금속이온들이 주로 사용되고 있다. 에틸렌 아이오노머의 특성에 큰 영향을 미치는 인자로는 매트릭스 수지인 에틸렌 구조 이외에 카르복실산 염의 함량 또는 비율, 금속 이온 종류 등이 있다. 상업화된 아이오노머로는 「Surlyn」 이외에도 butadiene-acrylic acid 공중합체, perfluorosulfonate ionomer, perfluorocarboxylate ionomer 등이 있으며,[1] 연구가 활발히 이루어지고 있는 아이오노머로는 styrene-acrylic acid 공중합체,[6] sulfonated polystyrene,[7] sulfonated polypentenamer[8] 등이 있다. 최근에는 아이오노머를 이용하여 나노복합재료를 제조하는 연구도 보고되고 있다.[9,10]

아이오노머에서는 비극성 주쇄인 폴리에틸렌, 폴리스티렌 등이 주성분으로 매트릭스를 구성하고 여기에 극성인 카르복실산, 설폰산 등의 염(salt)이 분포되어 비극성인 매트릭스와 극성인 이온 그룹들 사이에 친화성이 적으므로 극성 그룹들이 서로 뭉쳐 수십 Å 크기의 클러스터를 이루고 이들이 물리적인 가교역할을 하는 것으로 알려져 있다. 따라서 아이오노머는 낮은 융점과 높은 용융점도를 가져 열접착성이 우수한 특징을 갖고 있다.

아이오노머 연구에서 주로 연구되고 있는 이온 그룹으로는 카르복실과 설폰 그룹이 대표적이다. 이들은 중합 시 공중합 형태로 도입되거나 중합된 고분자를 개질하여 쉽게 측쇄로 도입이 가능하고 금속 카운터 이온의 종류 및 농도를 조절하여 특성이 우수한 아이오노머 재료를 개발하기가 용이한 장점을 갖고 있다.[1-3]

본 논문에서는 폴리에틸렌의 측쇄에 카르복실 그룹 이외에 아마이드 그룹을 갖는 변성 폴리에틸렌을 제조하였다. 원료로서 폴리에틸렌 메틸아크릴레이트 (poly(ethylene-co-methylacrylate), PEMA로 표기)를 KOH 및 암모니아 수용액과 고온, 고압에서 반응시켜 메틸아크릴레이트에 있는 에스터 그룹을 카르복실산(carboxylic acid), 카르복실산 칼륨(potassium carboxylate), 아마이드 그룹으로 변화시켜 안정성이 우수한 변성 폴리에틸렌 수분산액을 제조하고 이를 필름으로 캐스팅하여 이들 측쇄 그룹들의 조성비에 따른 필름의 열적, 기계적, 열접착 등의 특성 변화를 조사하였다.

2. 실 험

2.1. 약품 및 변성 폴리에틸렌 제조

본 연구에 사용된 주원료인 PEMA 및 PEMA와 반응시켜 변성 폴리에틸렌을 합성하기 위한 약품은 Table 1과 같다. 변성 폴리에틸렌의 제조방법과 측쇄 종류 확인 및 조성의 분석 방법은 본 논문 시리즈 1에 자세히 서술되어 있다.[11]

2.2. 필름 제조

제조된 변성 폴리에틸렌 수분산액을 이용한 필름 제조는 온도, 습도가 각각 조절되는 항온 항습기를 이용하여 실시하였다. 이때 온도는 ±0.1℃, 습도는 ±3% 이내로 조절하였다. 고형분 함량이 15 wt%로 일정한 변성 폴리에틸렌 수분산액을 깨끗한 유리판에 균일하게 도포 한 다음 항온 항

Table 1. Materials

Materials	Suppliers	Grade
poly(ethylene-co-methylacrylate) (PEMA) (20 wt%)	Chevron Chem. Co.	technical
ammonia water (28% NH_3)	Oriental Chemical Co.	extra pure
KOH (85% KOH)	Kokusan Chem. Co.	extra pure
water		deionized, distilled

습기에서 넣어 필름을 건조하였다. 90℃, 90% 상대습도에서 4시간 동안 필름을 제조한 후 이형하여 건조하여 약 25 μm 두께의 필름을 얻었다.

2.3. 필름의 특성 측정

2.3.1. 열적특성

제조된 필름의 열 분석을 위하여 Du Pont 사의 Thermal Analyzer를 사용하였으며 Differential Scanning Calorimetry(DSC) 실험의 경우 70℃ 감압 하에서 3일간 건조한 시료 약 10 mg을 정확히 무게를 달아 10℃/min의 가열속도로 질소분위기(유속 : 30 cc/min) 하에서 측정하였다.

2.3.2. 기계적 물성

ASTM D-638 중의 type V에 따라 시편 제작용 펀치를 사용하여 필름으로부터 시편을 만든 후 Instron (Model 1125)을 사용하여 인장특성을 측정하였다. 이때 crosshead speed는 50 mm/min이었다.

2.3.3. 열접착성(heat seal)

열접착성을 측정하기 위해서는 온도, 시간, 압력이 조절되는 열접착 장치가 필요하다. 본 연구에서는 주위에서 쉽게 볼 수 있는 봉투의 열접착 포장용 장치와 비슷하게 열접착 장치를 제작 사용하였다. 열접착 장치는 air cylinder를 사용하여 열접착 압력, 시간, 접착면의 표면온도 조절이 가능하며 ASTM F-88 및 TAPPI 517 방법을 응용, 다음과 같은 방법으로 시편을 제작하고 열접착강도(seal strength)를 측정하였다.

변성 폴리에틸렌 필름을 가로 2.5 cm, 세로 7 cm의 정확한 직사각형으로 자른 후 세로 부분을 반으로 접고 역시 가로 2.5 cm, 세로 7 cm의 종이(두께 90 μm인 복사용지)를 접어 필름의 겉면에 덧댄다. 즉 필름이 종이의 안쪽에서 서로 마주보게 한 후 접힌 끝 부분을 열접착한다. 열접착된 필름은 Instron을 사용하여 양끝을 grip으로 잡고 당겨 접착면이 떨어지는데 필요한 힘을 측정하여 접착면 10 mm 당의 열접착강도(heat seal strengh) 로 환산하였다. 이때 Instron의 crosshead speed는 250 mm/min이었다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 열 분석

결정성 고분자의 열적 특성은 분자 구조에 큰 영향을 받으며 특히 공중합체의 열적 특성은 조성비, 고분자 내의 배열, 입체 구조 등에 영향을 받는다.

PEMA로부터 가수분해 및 ammonolysis에 의해 제조된 Figure 1과 같은 측쇄를 갖는 변성 폴리에틸렌에서는 측쇄의 조성과 열적 특성과의 관계 규명이 열접착 특성, 필름의 강도 등을 이해하는데 중요한 역할을 한다. 본 연구에서 사용한 Figure 1의 에틸렌 몰비 x는 약 0.925, 메틸아크릴레이트 몰비 y는 0.075 정도이고 M^+이온이 K^+ 이다. 본 논문에서는 측쇄의 몰 비를 측쇄 그룹끼리의 몰비 개념을 사용했다. 즉 COOK의 몰

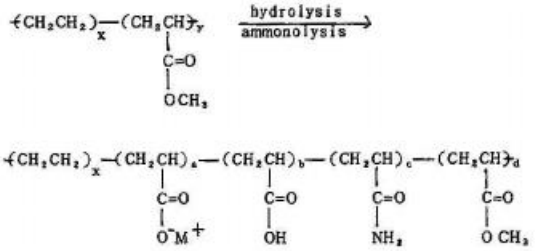

Figure 1. Preparation of modified polyethylenes with various pendent groups from PEMA.

비란 a/(a+b+c+d)를 의미한다 (a=COOK, b=COOH, c=$CONH_2$, d=$COOCH_3$).

Figure 2는 본 연구에서 제조된 변성 폴리에틸렌 (측기의 조성비 COOK 35 몰%, $CONH_2$ 60 몰%)의 DSC diagram이다. 그림에서 "곡선 1"은 -150℃에서 150℃까지 가열하며 얻은 1차 가열 곡선이고 "곡선 3"은 이를 -150℃까지 냉각하여 얻은 냉각곡선이다. "곡선 2"는 이를 다시 가열하며 얻은 2차 가열곡선이다.

Figure 2에서 1차 가열 곡선을 볼 때 변성 폴리에틸렌은 -100℃에서 유리전이온도(Tg)가 보이며 43℃, 81℃, 103℃에서 3개의 흡열 피크가 관찰되었다. 고분자의 DSC 곡선에서 흡열 피크는 주로 결정이 녹는 용융이나 용제가 증발될 때 나타난다. 냉각 시에는 결정화가 일어나는 것을 의미하는 발열 피크가 52℃, 24℃에서 나타나고 다시 2차 가열 곡선에서는 -100℃ 부근의 Tg는 변하지 않고 세 개였던 흡열 피크 중 두 개가 없어지고 86℃ 부근에서 하나의 흡열 피크 만이 보이고 있다. 다른 측기 조성을 갖는 변성 폴리에틸렌에서도 유사한 모양의 DSC diagram을 얻을 수 있었다. 이 때 Tg는 Figure 2에서 보이는 바와 같이 가열 횟수, 즉 시료의 열이력에 따라 거의 변하지 않지만 융점 또는 증발을 나타내는 흡열 피크가 2차 가열곡선에서는 1차 가열 곡선에서 나타난 3개의 피크가 없어지고 단 하나의 피크 만이 관찰되어 열이력에 큰 영향을 받고 있음을 알 수 있다. Figure 2의 DSC 곡선에서 보이는 흡열 피크는 100℃ 부근 이하에서 나타나고 피크 모양이 비교적 뾰족한 점으로 볼 때 필름 제조 시 포함될 수 있는 물의 증발 피크는 아닌 것으로 판단된다. 1차 가열 곡선에서 나타나는 여러 개의 흡열 피크는 수분산액의 입자로부터 필름 제조 시 입자의 불균일성은 물론 결정성의

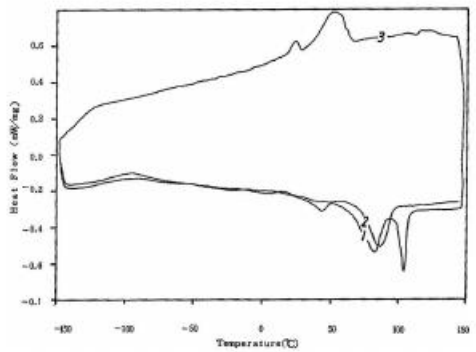

Figure 2. DSC curves of modified polyethylenes.

폴리에틸렌 주쇄로 이루어진 매트릭스 부분, 측쇄인 극성 그룹이 뭉쳐 클러스터를 이루는 영역 등 필름이 다양한 몰폴로지를 가질 수 있으므로 이들 영역에 따라 각각 다른 구조를 갖는 결정이 생긴 것으로 추정되며 이를 150℃까지 가열하여 용융시키고 다시 결정화시키면 이들 영역들이 서로 혼합되어 하나의 구조를 갖는 결정이 형성되기 때문에 하나의 피크가 나타나는 것으로 보인다. 또 고려해야할 사항은 1차 곡선에서 103℃인 융점 피크 온도가 2차 곡선에서 86℃로 매우 낮아 졌는데 이는 처음 제조 시 비교적 순수하게 폴리에틸렌 매트리스 만으로 이루어졌던 결정이 재결정 시에는 다른 물질들이 포함되어 불순물을 포함하게 되므로 결정구조에서 결함이 나타나 낮은 온도에서 녹는 것으로 추정된다. 이는 결과적으로 변성 폴리에틸렌 필름에서는 열접착 가능 온도가 열이력에 따라 달라질 수 있으며 융점이 105℃ 정도인 저밀도 폴리에틸렌(LDPE) 보다도 낮은 온도에서 필름의 열접착이 가능할 것으로 보인다.

3.2. 인장 특성

본 연구에서 제조한 변성 폴리에틸렌 필름의 인장특성은 제조 조건인 반응시간, 반응온도 등에 영향을 받을 것으로 예상되어 최적의 제조조건을 찾기 위해 반응시간 및 반응온도를 변화시켜가며 합성하여 얻은 수분산액으로부터 제조한 필름의 인장특성을 Figure 3 및 Figure 4에 나타내었다.

Figure 3은 반응 완결 시 측기 중의 -COOK, -$CONH_2$가 각각 50 및 30 몰%가 될 수 있는 원료를 사용하고 반응시간이 12시간으로 고정되

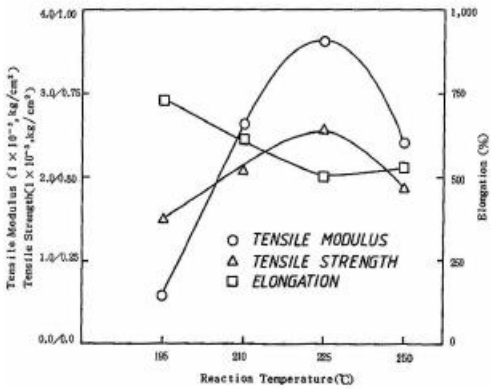

Figure 3. Changes of tensile properties with reaction temperatures for modified polyethylenes.

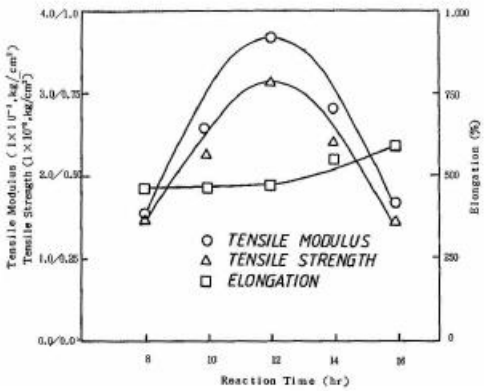

Figure 4. Changes of tensile properties with reaction times for modified polyethylenes.

었을 때 반응온도를 변화시키며 제조한 변성 폴리에틸렌 필름의 인장강도, 인장모듈러스, 연신율을 나타낸 것이다. 반응온도가 증가함에 따라 인장강도와 인장모듈러스가 증가하여 225℃에서 최대값을 보여주고 있다.

Figure 4는 Figure 3에서와 같은 원료 비를 사용하고 반응온도를 225℃로 고정시켰을 때 반응시간을 달리하여 합성하여 제조한 수분산액으로부터 캐스팅한 필름의 인장물성 변화를 나타낸 것으로 약 12시간 반응시켰을 때 가장 좋은 물성을 나타내었다. 이는 사용된 원료 비에서는 225℃에서 12시간 반응시키는 것이 분산액으로부터 제조된 필름의 기계적 특성이 우수함을 의미한다. 이 이유를 정확히 해석하기 위해서는 측기의 조성비 같은 변성 폴리에틸렌의 화학구조 뿐 아니라 필름 형성에 영향을 미치는 분산입자의 모양, 크기 등의 상태도 고려해야 하는데 분산 입자 상태의 영향을 알아보기 위해서는 입자 생성 경로를 이해해야한다. 즉 고온, 고압에서 펠렛 상태의 PEMA를 KOH, 암모니아의 알칼리 수용액과 반응시켜 변성 폴리에틸렌 제조 시 PEMA의 표면으로부터 내부로 알칼리 수용액이 확산(diffusion)되면서 표면에서부터 PEMA 측기인 에스터 그룹에서 가수분해와 ammonolysis 반응이 일어나고 결과적으로 측기의 친수성이 커지므로 친수성이 커진 PEMA가 서서히 물에 안정한 분산입자로 변하게 된다. 즉 반응과정이 PEMA 펠렛→용융체(넹각하면 덩어리 또는 필라멘트 모양 : 고체)→팽윤 (Gel)→분산, 수용액 단계를 거치는데 온도 및 반응시간에 따른 필름강도 실험에서는 반응 도중의 분산액을 얻고 이를 필름으로 제조하므로 입자상태의 영향에 대한 고려가 필요하며 현 결과는 단순히 공정 조건에 따른 인장특성 변화로 이해해야한다.

본 실험에서 제조한 변성 폴리에틸렌은 반응물 비 및 반응조건에 따라 측기의 조성이 변하고 이에 따라 구조가 영향을 받으며 결과적으로 열적 및 기계적 물성이 영향을 받게된다. 즉 도입된 극성기가 COOK, $CONH_2$, COOH 등 다양하므로 단순히 이온그룹 함량의 영향만이 아니라 아마이드기의 양 등 복합적인 영향을 받을 것으로 보인다.

Figure 5는 측기의 조성에 따른 변성 폴리에틸렌 필름의 인장강도를 도시한 것이다. 제조한 변성 폴리에틸렌 필름은 일반적으로 인장강도가 200 Kg/cm^2 보다 작은 LDPE나 PEMA에 비해 높은 인장강도를 보이고 있다. Figure 5에서 괄호 안의 숫자는 측기 중의 아마이드 몰 비를 의미하며 그림에서 알 수 있듯이 COOK의 조성비가 약 70%까지 증가함에 따라 인장강도는 점차 감소하다 다시 증가하는 경향을 나타내고 있다.

Figure 6은 측기 중 -COOK 몰 비가 30%으로 일정할 때 아마이드기의 몰 비 증가에 따른 인장모듈러스 변화로서 아마이드기의 증가에 따라 인장 모듈러스가 급격히 증가함을 보여주고 있다. 즉 아마이드기가 필름의 탄성율에 매우 큰 영향을 미침을 알 수 있다.

Figure 5와 6을 종합해 보면 본 연구에서 제조한 주쇄에 폴리에틸렌 구조를 갖고 측쇄에 COOK, $CONH_2$, COOH 등 이온기 또는 극성기를 갖는 변성 폴리에틸렌에서는 이온그룹인

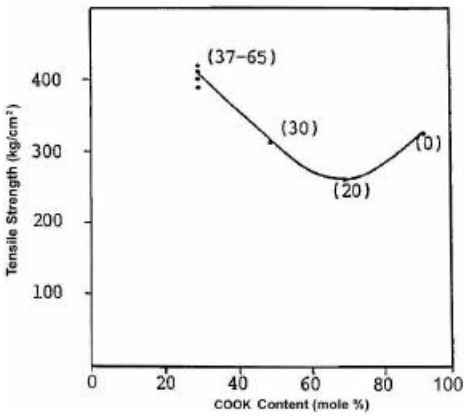

Figure 5. Changes of tensile strengths with pendent groups of modified polyethylenes (Numrics in parenthesis mean amide contents of pendent groups).

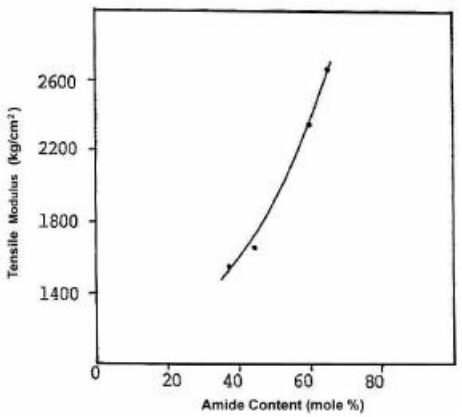

Figure 6. Changes of tensile moduli with amide compositions in pendent groups of modified polyethylenes.

COOK조성비가 60~70% 부근에서 최소 인장강도를 나타내고 $CONH_2$ 함량 증가에 따라서는 인장탄성율이 증가함을 알 수 있다. 이와 같이 측기의 종류 및 함량에 따른 기계적 강도 변화는 포장재, 필름 등으로 사용 시 중요한 그레이드 선정 기준이 된다.

3.3. 열접착성

상업적으로 널리 쓰이고 있는 「Surlyn」의 경우 같은 정도의 열접착성을 유지시키는데 PE 보다 15~20℃ 낮은 온도에서 가능하므로 PE 보다 낮은 온도에서 열접착이 가능하고, 또 열접착 강도가 PE에 비해 거의 두 배 이상이기 때문에 전체적으로 포장의 효율과 신뢰성을 향상시킨다고 알려져 있다.[11]

본 연구에서 제조된 변성 폴리에틸렌 수분산액은 캐스팅으로 필름 제조가 가능하고 또한 응집시켜 입자화 한 후 압출성형으로 필름을 만들 수도 있으며, 또는 여러 베이스 물질에 코팅을 하여 사용할 수가 있는데 이 때 포장재로서의 중요한 특성은 열접착성이다.[12]

Figure 7은 제조한 변성 폴리에틸렌 필름을 80℃, 90℃에서 열접착했을 때의 강도를 나타낸 것이다. PE 필름은 80℃에서 열 접착이 이루어지지 않았으나 90℃에서는 열접착이 가능하여 약 75 g/10 mm의 미약한 접착강도를 보인 반면 제조된 변성 폴리에틸렌 필름은 80℃에서도 열접착

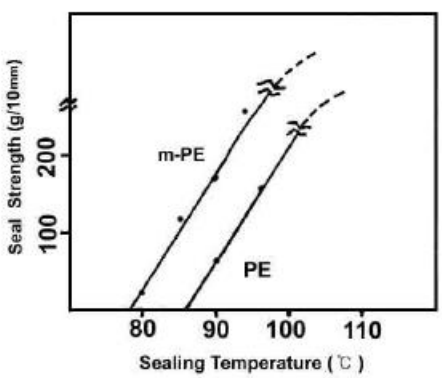

Figure 7. Changes of sealing strengths with sealing temperatures for modified polyethylene and LDPE.

이 가능하였으며 90℃에서는 150 g/10 mm의 우수한 열접착강도를 보여주고 있다. 즉 제조된 변성 폴리에틸렌은 PE에 비해 약 10℃ 정도 낮은 온도에서도 열접착이 가능한 것으로 나타났으며 이것은 Surlyn의 경우와 유사하다. 이는 앞서 Figure 2에서 본 바와 같이 변성 폴리에틸렌의 융점이 90℃ 이하로 100℃ 이상인 폴리에틸렌보다 낮은 것도 하나의 원인이 될 수 있다. 100℃ 이상의 접착온도에서는 제조된 변성 폴리에틸렌은 물론 PE 필름도 완전히 접착되어 test가 불가능하였다. 즉 접착된 부분이 떨어져 나감과 함께 필름 자체가 늘어나서 절대적인 접착강도의 측정이 불가능하였다. Figure 7의 점선 부분은 매우 강한 seal이 되어서 절대적인 접착강도를

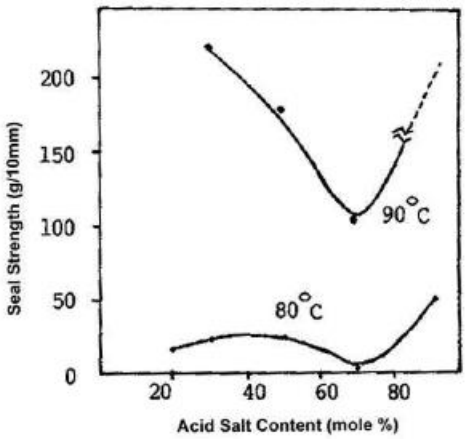

Figure 8. Changes of sealing strengths with pendent groups of modified polyethylenes.

구할 수 없었던 온도 영역을 의미한다.

Figure 8은 측기의 조성에 따른 접착강도를 조사하기 위하여 80, 90℃에서 열접착한 시편에 대하여 접착강도를 측정한 결과로서 -COOK의 양이 증가함에 따라 접착강도는 감소하다가 약 70% 이상에서는 다시 상승하는 경향을 보여 주고 있다. 열접착강도에서도 인장강도의 경우와 비슷하게 측기 중 -COOK이 약 70 몰%에서 최소값을 나타내고 있다.

4. 결 론

본 연구에서는poly(ethylene-co-methylacrylate)를 KOH, 암모니아 수용액과 반응시켜 측쇄에 -COOK, $-CONH_2$, -COOH를 갖는 수분산 형태의 변성 폴리에틸렌을 합성하고 이를 유리판에서 캐스팅하여 필름으로 제조한 후 열적, 기계적, 열접착 특성을 조사하였다. DSC에 의한 열분석 결과 제조된 이온성 필름은 열이력에 따라 유리전이온도는 변화하지 않았으나 용융피크에서는 큰 변화가 관찰되었다. 1차 가열 시 3개의 용융피크가 나타났으나 2차 가열 시에는 1개의 용융 피크가 관찰되었다. 반응조건에 따른 필름의 인장특성은 225℃에서 12시간 반응이 우수한 결과를 나타내었다. 측기 중의 COOK 함량을 고정하고 아마이드 그룹의 함량을 증가시키면 인장 모듈러스가 증가하였으며 -COOK를 증가시키면 약 측기 중의 70 몰% 부근에서 최저의 인장강도를 나타내었다. 변성 폴리에틸렌 필름의 열접착은 약 80℃부터 가능하였으며 90℃에서의 열접착 강도는 측기 중 약 70 몰% -COOK 농도에서 최저값을 나타내었으며 폴리에틸렌 필름 보다 약 10℃ 낮은 온도부터 열접착이 가능하였다.

참 고 문 헌

1. R. D. Lundberg, in Enc. Polym. Sci. Eng., 2nd ed., vol. 8, ed by H. F. Mark, John Wiley & Sons, Inc., New York (1987).
2. L. Holliday, "Ionic Polymers", Applied Science Publishers, Inc., New York, (1975).
3. A. Eisenberg and M. King, "Ion-Containing Polymers", Academic Press, Inc., New York (1977).
4. M. R. Tant, K. A. Mauritz, and G. L. Wilkes, "Ionomers : Synthesis, Structure, Properties and Applications", Chapman & Hall, London (1997).
5. A. J. Peacock, "Hand Book of Polyethylene : Structure, Properties, and Applications", Marcel Dekker, Inc., New York (2000).
6. A. Eisenberg, *J. Polym. Sci. Polym. Symp.* **45**, 99 (1974).
7. Lundberg, H. S. Makowski, and L. Westerman, *Adv. Chem. Ser.*, **187**, (1980).
8. W. J. MacKnight and T. R. Earnest, *J. Macromol. Sci. Polym. Technol. Rev.*, **16**, 41 (1981).
9. P. R. Start and K. A. Mauritz, *Polymer Preprints.*, **42**(2), 75 (2001).
10. Y. Gao, N. R. Choudhury, N. Dutta, J. Matisons, M. Reading, and L. Delmotte, *Chem. Mat.*, **13**, 3644 (2001).
11. J. H. Lee and S-H. Lee, Adhesion and Interface, **2**(3), (2002).
12. D. S. Davis, D. N. M. Simpson, L. Van den Bossche, D. R. Weisinger, Polyolefins 2001. Conference Proceedings, Houston, Tx., 25th-28th Feb. 2001, p. 171.