

# 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드의 노화에 따른 접착력 변화 연구

강 현 민 · 윤 태 호<sup>†</sup>

## Study of Aging and Durability on Plasma Polymerized Tire Cords

H. M. Kang and T. H. Yoon<sup>†</sup>

### 요 약

강철 타이어 코드의 접착력 향상을 위하여 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅, 아르곤 에칭+아세틸렌 플라즈마 중합 코팅, 그리고 아르곤 에칭+담체를 이용한 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅을 실시하였으며, 접착력은 TCAT시편으로 측정하였다. 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드의 내구성을 고찰하기 위하여 제 1 단계로 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어코드를 상온에서 1, 3, 5, 10, 15일 동안 방치한 후 TCAT 시편을 제조하여 접착력변화를 측정하였으며, 제 2 단계로는 플라즈마 중합 코팅된 코드로 TCAT 시편을 제조한 후 증류수, 10% NaCl 수용액에서 또는 100℃ 오븐에서 1, 2, 3, 4주간 노화시키면서 접착력 변화를 측정하였다. SEM/EDX을 이용하여 코드의 파괴표면을 분석하였으며, 황동코팅과 비교 분석하였다. 아르곤 에칭+담체를 이용한 아세틸렌 플라즈마 중합으로 코팅된 강철 타이어 코드의 접착력은 황동코팅된 시편의 접착력과 거의 같은 수준이었다. 타이어 코드의 상온 노화시험에서 황동코팅된 시편이 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 시편에 비하여 우수 내구성을 보여주었으나, TCAT 시편의 노화에서는 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅이 황동코팅에 비하여 우수하거나 비슷한 결과를 보였다.

### ABSTRACT

Steel tire cords were subjected to plasma polymerization coating of acetylene in order to enhance the adhesion to rubber compounds. Plasma polymerization coating was varied to plasma polymerization coating of acetylene, argon plasma etching+plasma polymerization, or argon plasma etching+plasma polymerization with Ar carrier gas. Adhesion was evaluated via TCAT samples and compared to those with brass coated tire cord. For durability study, plasma polymer coated tire cords were aged in lab atmosphere for 1, 3, 5, 10 or 15 days, while TCAT specimens prepared with plasma polymer coated tire cords were aged in distilled water, 10% NaCl solution or 100℃ oven for 1, 2, 3 or 4 weeks. After testing, failure surfaces were analyzed

• 2003년 2월 6일 접수(received), 2003년 3월 8일 채택(accepted)

• 광주과학기술원 신소재공학과, 광주광역시 북구 오룡동 1번지(Department of Materials Science and Engineering, Kwangju Institute of Science and Technology)

<sup>†</sup>주저자(Corresponding author): e-mail: thyoon@kjist.ac.kr

with SEM/EDX. Among the treatments, the highest adhesion was obtained by Ar etching+ acetylene plasma polymerization coating with Ar carrier gas, providing almost same pull-out force as the brass coated tire cords. Upon the aging of the tire cords in the lab atmosphere, brass coated tire cords provided better adhesion than plasma polymer coated tire cords, while the TCAT samples with plasma polymer coated tire cords exhibited similar or slightly superior durability to those with brass coated tire cords.

**KEYWORDS : STEEL TIRE CORDS, TIRE CORD ADHESION TEST (TCAT), PLASMA ETCHING, PLASMA POLYMERIZATION, ACETYLENE, DURABILITY**

## 1. 서 론

타이어의 성능은 타이어 제조에 사용되는 코드와 고무의 기계적 특성뿐만 아니라 코드와 고무간의 접착력에 크게 의존한다. 따라서 강철 타이어 코드와 고무의 접착력 향상을 위하여 그 동안 많은 연구가 수행되었으며, 현재 상용 타이어 제조에는 황동코팅이 가장 널리 사용되고 있다.<sup>[1-4]</sup> 하지만 이 황동코팅 공정은 환경오염물질을 배출하며, 황동 코팅된 타이어 코드는 부식에 약하다는 단점이 있어 많은 연구자들이 황동코팅을 대체할 방법을 연구 중이며, 최근에는 환경친화적인 방법으로 각광받고 있는 플라즈마 에칭 및 플라즈마 중합 코팅법의 사용에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.<sup>[5-12]</sup>

플라즈마 에칭은 금속, 세라믹, 고분자 등의 표면을 플라즈마 에너지를 사용하여 세척하면서 동시에 관능기를 도입하여 접착력을 향상시킨다.<sup>[7-11]</sup> 이에 반하여, 플라즈마 중합 코팅은 물질의 표면에 관능기를 지닌 고분자 박막을 도입하여 접착성을 향상시킨다.<sup>[12-19]</sup> 최근 Tsai 등은 강판을 아르곤 또는 질소를 이용한 플라즈마 에칭과 아세틸렌 플라즈마 중합으로 처리하여 고무와의 접착력을 크게 향상시킨 것으로 보고하였다.<sup>[20]</sup> 접착력 증가 메카니즘은 아세틸렌 플라즈마 중합에 의해 강판 표면에 도입된 코팅에 존재하는 C=C 및 C≡C 결합이 고무의 경화반응에 참여하여 공유결합을 형성시켰기 때문으로 보고되고 있다.<sup>[21-24]</sup>

따라서 본 연구에서는 강판대신에 타이어용 강철 코드를 플라즈마 중합으로 코팅을 실시하였으며, 플라즈마 에칭도 사용하였다. 플라즈마 파워, 처리시간, 반응기 압력 등을 변화시키면서 플라즈마 에칭과 중합 조건을 최적화 하였다. 아세틸렌 플라즈마 중합코팅된 타이어 코드의 내구성 연구를 위하여 상온에서 1, 3, 5, 10, 15일 동안

방치한 후 TCAT 시편을 제조하여 접착력 변화를 측정하였다. 또한 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드로 TCAT 시편을 제조한 후 이 시편을 증류수, 10%의 NaCl 수용액 또는 100°C 오븐에서 1, 2, 3, 4주간 노화시킨 후 접착력 변화를 분석하였다. 또한 파괴표면 연구를 위해서 SEM/EDX을 이용하여 분석하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 실험 재료

플라즈마 중합 및 플라즈마 에칭 조건의 최적화에는 효성 T&C에서 제공받은 0.35 mm의 아연도금 강철선을 사용하였으며, 비교를 위하여 황동도금된 강철선을 사용하였다. 하지만 타이어 코드의 내구성 연구에는 노화 효과를 극대화시키기 위하여 아연 도금된 twisted tire cords(2+2)를 사용하였으며, 비교를 위하여 황동코팅된 2+2 cords를 사용하였다. TCAT 시편 제조를 위하여 고무는 금호타이어(주)에서 제공받은 TBR용 고무를 사용하였다. 플라즈마 중합용 기체로서는 아세틸렌(99.9%)을 사용하였고, 그리고 에칭 및 담체로 아르곤(99.9%)이 사용되었다.

### 2.2. 타이어 코드의 플라즈마 에칭 및 플라즈마 중합 코팅

Pyrex로 제작된 bell-jar형의 반응기, 수동 임피던스 조절장치, 유량조절장치 등으로 구성된 RF (13.56 MHz) 플라즈마 발생장치(HPPS-300, Hanatek)를 이용하여 플라즈마 중합을 실시하였다. 먼저 bell-jar형 반응기를 아세톤과 메탄올

로 세척하고 건조한 후  $10^{-3}$  Torr까지 감압한 다음, 아세틸렌(acetylene)이나 아르곤으로 충전하였으며, 반응기내의 압력은 유량조절장치를 이용하여 제어하였다. 접착력 향상을 위한 플라즈마 증합은 1) 플라즈마 증합 코팅, 2) 아르곤 플라즈마 에칭+플라즈마 증합 코팅, 3) 아르곤 플라즈마 에칭+담체(carrier gas)를 이용한 플라즈마 증합 코팅의 세 종류 실시하였다. 최대의 접착력을 얻기 위하여 plasma power, time 및 gas pressure를 변화시키면서 조건을 최적화 하였다.

### 2.3. 노화에 따른 접착력 변화 고찰

먼저 플라즈마 증합 코팅된 타이어 코드의 내구성을 연구하기 위하여 최적조건에서 플라즈마 증합된 타이어 코드를 상온에서 1, 3, 5, 10, 15 일 동안 방치한 후 TCAT 시편을 제조하여 접착력 변화를 측정하였다. 다음으로 플라즈마 증합 코팅된 타이어 코드를 사용하여 TCAT 시편을 제조한 후, 이들 시편을 증류수, 10%의 NaCl 수용액 또는 100°C 오븐에서 1, 2, 3, 4주간 노화시킨 후, 노화에 따른 접착력 변화를 측정하였다. 노화실험시 발생할 수 있는 코드의 인장강도 감소를 고려하여 코드의 삽입깊이를 10 mm로 하였다.

TCAT 시편은  $20 \times 20 \times 75$  mm 크기의 볼드를 이용하여 제조되었으며, 고무의 가교온도인 145°C까지 볼드를 예열시킨 후, 볼드를 고무로 반을 채우고, 그 위에 타이어 코드의 삽입깊이가 10 mm가 되도록 위치한 다음 나머지 반을 고무로 충전하였다. 그 다음 145°C에서 45분 동안 3000 psi의 압력으로 가교시킨 후 서서히 냉각시킨 다음, 12시간 이상 상온에서 방치하였다. 이렇게 제조된 시편은 Instron 5567을 이용하여 50 mm/min의 속도로 최대 pull-out force를 측정하였으며, 6개의 시편으로부터 평균치를 구하여 사용하였다.

접착력 시험 후, 타이어 코드의 rubber coverage 확인을 위하여 가장 보편적인 pull-out force를 보여주는 시편을 SEM(Jeol, JSM-5800)을 이용하여 분석하였다. 분석시편은 Au로 코팅하였으며, 10 KeV에서 분석하였다. 또한 접착메카니즘 규명을 위하여 코드의 표면을 EDX(Oxford Instrument)를 이용하여 분석하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 타이어 코드의 플라즈마 에칭 및 플라즈마 증합 코팅

타이어 코드의 아세틸렌 플라즈마 증합 코팅에서 플라즈마 전압을 10 W로, 기체 압력을 30 mTorr로 고정하고 처리시간을 30초에서 7분까지 변화시켰을 때 30초에서 가장 높은 접착력을 나타내었다. 다음으로 처리시간은 30초, 기체압력은 30 mTorr로 고정시키고, 플라즈마 전압을 5 W에서 20 W로 변화시켰을 때, 가장 높은 접착력은 10 W에서 얻어졌으며, 처리시간 30초, 플라즈마 전압 10 W에서 기체압력을 20 mTorr에서 40 mTorr까지 변화시켰을 때, 가장 높은 접착력은 30 mTorr에서 얻어졌다. 따라서 아세틸렌 플라즈마 증합 코팅의 최적조건은 처리시간 30초, 플라즈마 전압 10 W, 기체압력 30 mTorr로 결정되었다. 이 최적조건에서 아세틸렌 플라즈마 증합코팅된 타이어 코드는 185 N 정도의 접착력을 보였으며, 이는 아연 코팅된 타이어 코드의 30 N 보다는 크게 향상된 결과이나, 황동 코팅된 타이어 코드의 290 N에 비해서는 아주 낮은 접착력이다 (Fig. 1).

다음으로 아세틸렌 플라즈마 증합 코팅에 앞서 아르곤 플라즈마 에칭을 실시하기 위하여 타이어 코드의 아르곤 플라즈마 에칭 조건을 최적화 하였다. 처리시간은 10분, 기체압력은 30 mTorr로 고정시킨 후, 에칭 전압을 10 W에서 90 W까지 변화시키면서 접착력 변화를 고찰한 결과, 50 W까지는 급격히 증가하다가 그 후에는 서서히 증가하였다. 다음으로 처리시간과 기체압력을 변화시켜 접착력 변화를 측정한 결과, 최적조건은 90 W, 10분, 30 mTorr로 결정되었다. 따라서 이 조건에서 아르곤 플라즈마 에칭을 실시한 후 아세틸렌 플라즈마 증합을 실시하였을 때 강철 타이어 코드의 접착력은 280 N으로 황동코팅된 시편(290 N) 보다 다소 낮은 것을 확인할 수 있었다.

따라서 아세틸렌 플라즈마 증합 코팅을 이용하여 타이어 코드의 접착력 향상을 위한 세 번째 시도로서 아르곤(Ar)을 담체로 이용한 플라즈마 증합 코팅을 실시하였다. 전체 기체 압력은 30 mTorr로 고정시킨 후, 아르곤:아세틸렌 비율을 0:30에서 20:10까지 변화시키면서 접착력 변화를 고찰하였으며, 최적의 결과는 5:25(아르곤:아

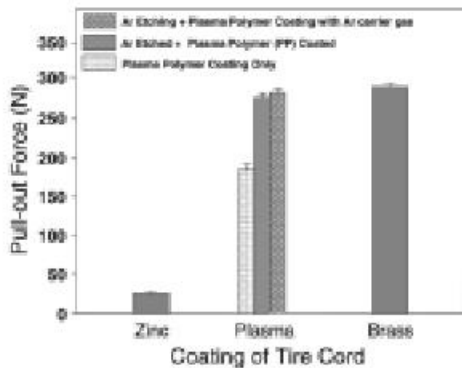


Figure 1. Adhesion properties of acetylene plasma polymer coated tire cords.

세틸렌)에서 얻어졌다. 따라서 아르곤 플라즈마 에칭+아르곤 담체를 이용한 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅으로 얻어진 접착력은 285 N으로 아르곤 담체를 이용하지 않은 플라즈마 중합코팅(280 N)에 비하여 약간 향상된 값을 보였으며, 이는 황동코팅된 시편(290N)과 비슷한 접착력이다(Fig. 1).

### 3.2. 플라즈마 중합된 타이어 코드의 내구성

플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드를 상온에서 1, 3, 5, 10, 15일 동안 방치한 후 TCAT 시편을 제조하여 접착력 변화를 고찰하였으며, 노화 시간에 따라 접착력이 서서히 감소하여 15일 후에는 약 10% 감소하는 현상을 보였다(Fig. 2). 이는 타이어 코드 표면 위에 도입된 C=C 및 C≡C 결합이 공기 중의 산소와 반응하여 다른 관능기로 변하여 고무와의 접착력이 낮아지기 때문으로 사료된다.<sup>[21-24]</sup> 이에 반하여 황동코팅된 시편은 15일 노화로 접착력이 약 3% 정도 감소하였는데, 이는 공기 중에서 15일 동안의 노화가 황동코팅의 산화에 크게 영향을 미치지 않았기 때문인 것으로 사료된다.

### 3.3. TCAT 시편의 노화실험

최적조건에서 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편을 증류수, 10%의 NaCl 수용액 및 100°C 오븐에서 1, 2, 3, 4주간 노화를 진행시킨 후 노화 시간에 따른 접착력 변화를 측정하였다.

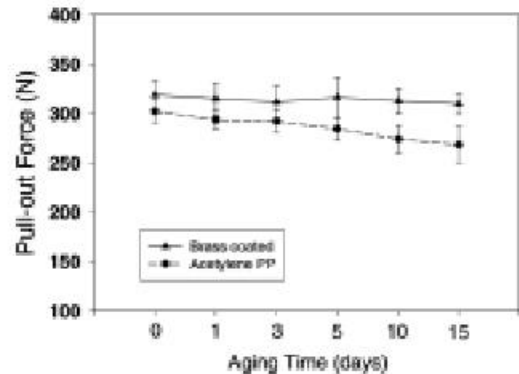


Figure 2. Adhesion properties of RT aged plasma polymer coated tire cords.

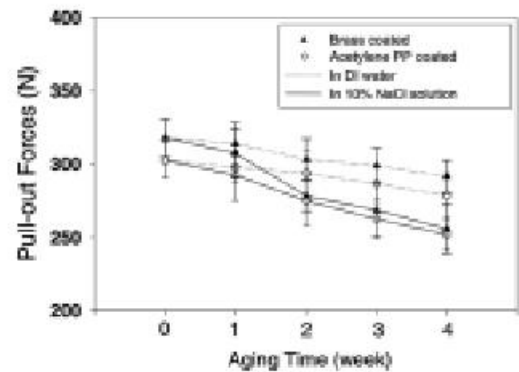


Figure 3. Durability of acetylene plasma polymer coated and brass plated tire cords aged in distilled water and 10 wt% NaCl solution.

#### 3.3.1. 증류수 및 10% NaCl 수용액에서의 노화

아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편을 증류수에서 4주 노화시켰을 때 12% 정도의 접착력 감소를 보였으며, 황동코팅된 타이어 코드로부터 제조된 TCAT 시편도 비슷한 접착력 감소를 보였다(Fig. 3). 이에 반하여 10% NaCl 수용액에서 노화된 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편은 약 20%의 접착력 감소를 나타내었다(Fig. 3). 하지만 같은 조건에서 황동코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편은 처음 1주간은 서서히 감소하는 접착력을 보였지만, 2주 노화에서는 급격한 감소를 보여 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편과 비슷한 접착력을 보였다. 이러한 결과는 황동코팅된 타

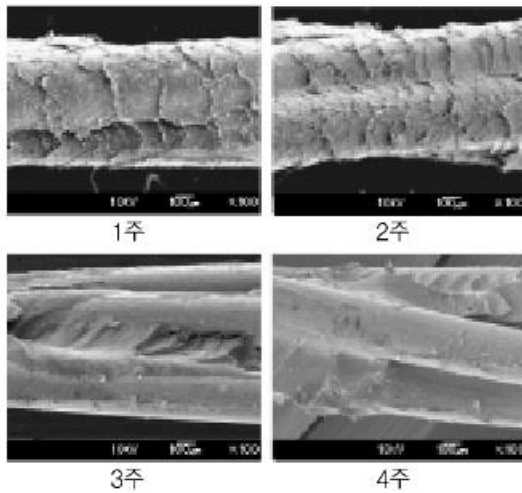


Figure 4. SEM micrograph of acetylene plasma polymer coated tire cord aged in 10 wt.% NaCl solution.

이어 코드가 10% NaCl 수용액에서 부식이 진행되지만, 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드는 고분자 코팅이 부식 방지 역할을 하기 때문에 사료된다.

노화에 따른 접착력 감소 메커니즘을 연구하기 위하여, 접착력 측정 후 타이어 코드 표면을 SEM으로 분석 결과, 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 시편과 황동코팅된 시편에서 증류수 노화에서 노화 시간에 관계없이 모두 100% 고무로 덮여 있음을 확인하였다. 하지만 10% NaCl 수용액에서는 두 시편 모두 노화 3주부터 코드 끝 부분에 남아있는 고무가 감소되는 것을 확인할 수 있었으며, 이러한 감소는 황동코팅된 시편에서 더욱 두드러졌다(Fig. 4, 5). 이러한 결과는 황동코팅이 NaCl 수용액에서 부식이 진행되기 때문에 사료되며, 황동코팅된 타이어 코드 시편에서 더 많은 접착력 감소를 보여주는 결과와 잘 일치된다.

10% NaCl 수용액에서 4주간 방치된 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 시편에서 고무가 남아있지 않은 부분을 EDX로 분석한 결과, C, Na, Fe, Zn 등이 검출되었으며, 이는 아연도금된 강철선 표면에 고무 및 NaCl 수용액 성분 이 약간 남아 있기 때문으로 보여진다. 하지만 황동코팅된 시편에서는 C, O, Fe, Cu, S, Zn가 검출되었으며, 여기서 O는 Cu의 산화(부식)로 인한 산화물 때문으로 보여지며, S는 고무의 경화제로 첨가된 S가 접착계면으로 이동하여 Cu-S 결합을 형성하

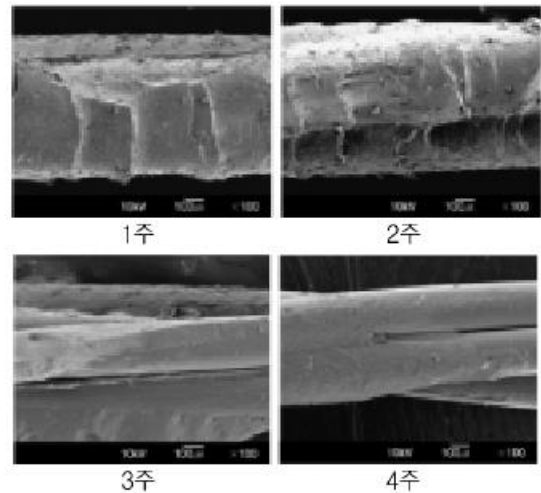


Figure 5. SEM micrograph of brass plated tire cord aged in 10% NaCl solution.

였기 때문에 판단된다. 이에 반하여 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 시편에서 산소가 검출되지 않은 것은 플라즈마 중합코팅이 산화를 방지하여 타이어 코드에 부식이 진행되지 않았기 때문에 사료된다.

### 3.4.2. 100℃ 오븐에서의 노화

100℃ 오븐에서 노화된 시편은(아세틸렌 중합 코팅된 타이어 코드로부터 제조된 TCAT) 노화가 진행됨에 따라 접착력이 서서히 감소하여, 4주 후에는 약 23% 감소된 접착력을 보였다. 이에 반하여 황동코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편은 초기 1, 2주에서는 급격한 감소를 보이다가, 그 후에는 서서히 감소하는 현상을 보였다. 따라서 노화되지 않은 상태에서는 황동코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편이 아세틸렌 중합코팅된 타이어 코드로 제조된 TCAT 시편 보다 높은 접착력을 보이지만, 1주 노화로 이 현상이 역전되고, 2주에는 격차가 더 커지는 현상을 볼 수 있다(Fig. 6).

이러한 결과는 100℃ 오븐에서 노화가 진행됨에 따라 고무에 존재하는 S가 계면으로 확산되어 많은 Cu-S 결합을 형성되면서, 계면에 존재하는 고무의 취성이 증가하여 접착력이 감소하기 때문으로 사료된다.<sup>[4]</sup> 이에 반하여 아세틸렌 플라즈마 중합코팅된 타이어 코드의 접착력은 타이어 코드 표면에 도입된 고분자 코팅에 존재하는 C=C 및



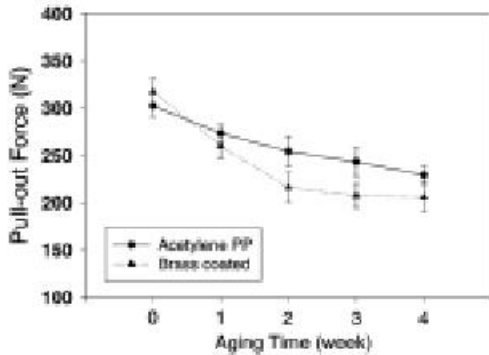


Figure 6. Durability of acetylene plasma polymer coated tire cords aged in 100°C oven.

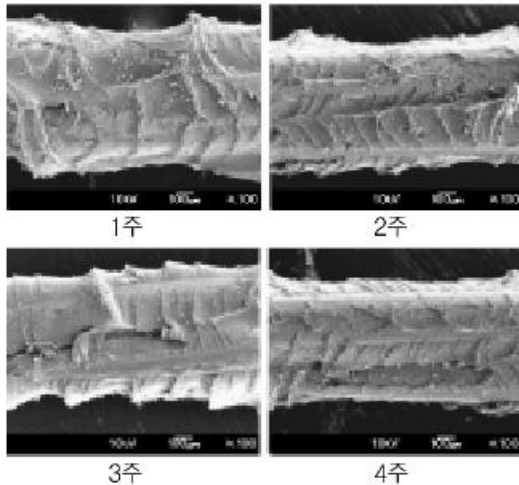


Figure 7. SEM micrograph of acetylene plasma polymer coated tire cord aged in 100°C oven.

C=C 결합 이 고무와 반응하여 공유결합을 형성하기 때문이며, 따라서 노화에 따른 접착력 감소는 공유결합의 파괴에 따른 것으로 사료된다.<sup>(21-25)</sup>

SEM 분석결과 100°C 노화된 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드에 남아있는 고무가 감소되는 것을 확인하였으며, 이는 접착력 감소와 잘 일치됨을 알 수 있다(Fig. 7). 이에 반하여 1, 2주 노화된 황동코팅 시편에서는 코드의 끝 부분으로 갈수록 남아있는 고무가 두꺼워짐을 확인할 수 있었으며, 이는 100°C 노화로 인한 고무의 경화때문으로 풀이된다(Fig. 8). 하지만 3, 4주 노화된 시편에서는 반대로 끝 부분으로 갈수록 남아있는 고무가 줄어들음을 확인할 수 있었는데 이는 Cu의 산화로 계면에서 파괴가 일어났기

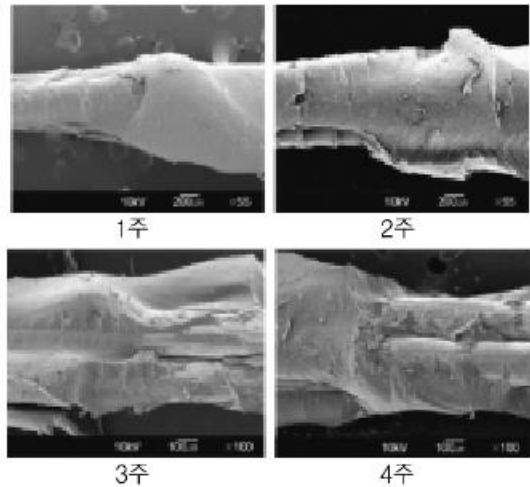


Figure 8. SEM micrograph of brass plated tire cord aged in 100°C oven.

때문으로 풀이된다. EDX 분석 결과 100°C 오븐에서 4주간 노화시킨 황동코팅된 시편에서 C, O, Fe, Cu, S, Zn이 검출되었으며, 따라서 계면에서 Cu의 산화를 뒷받침하고 있다.

## 4. 결 론

1. 강철 타이어 코드의 접착력은 아르곤 에칭 + 담체를 사용한 아세틸렌 플라즈마 중합에 의해서 크게 향상되었으며, 접착력은 황동코팅과 비슷한 결과를 보였다.
2. 상온 노화에서, 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 타이어 코드로 제조된 시편은 서서히 접착력이 감소하는 현상을 보여, 15일 노화로 약 10% 감소를 보였으나, 같은 조건에서 황동코팅된 타이어 코드로부터 제조된 시편은 약 3%의 감소를 보였다.
3. TCAT 시편의 증류수 노화실험에서 아세틸렌 고분자 중합 코팅된 시편은 황동코팅된 시편과 비슷한 접착력의 감소를 보였다. 하지만 10% NaCl 수용액에서는 황동코팅된 시편이 더 많은 접착력 감소를 보였다.
4. TCAT 시편의 100°C 오븐 노화실험에서는 아세틸렌 플라즈마 중합 코팅된 시편이 황동 코팅된 시편 보다 접착력 감소가 적은 것으로 나타났다.

## 감사의 글

본 연구는 한국과학재단 특정기초연구(No. 98-0502-09-01-3) 및 Brain Korea 21과제로 지원되었으며, 이에 감사드립니다.

## 참고 문헌

1. F. J. Kovac, *Tire Technology*, 5th edn. Goodyear Tire & Rubber Co. (1978).
2. A. Sabata, "Characterization of the adhesive interface between rubber and brass plated steel tire cords", M.S. Thesis, Virginia Tech. (1986).
3. Y. M. Tsai, F. J. Boerio and Dong K. Kim, *Journal of Adhesion*, **61**, 247-270 (1997).
4. W. J. van Ooij, S. Eufinger and Sheyu Guo, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, **17**, 123 (1997).
5. G. Grundmeier, C. Reinartz, M. Rohwerder and M. Stratmann, *Electrochimica Acta*, **43**, 165 (1998).
6. E. M. Liston, *Journal of Adhesion*, **30**, 199 (1989).
7. G. J. Farrow and C. Jones, *Journal of Adhesion*, **45**, 29 (1994).
8. G. J. Farrow, K. E. Atkinson, N. Fluck and C. Jones, *Surface Interface and Analysis*, **23**, 313 (1995).
9. B. Okhuysen, R. C. Cochran, R. E. Allred, R. Sposili and T. M. Donnellan, *Journal of Adhesion*, **45**, 3 (1994).
10. S. Mujin, H. Baorong, W. Yisheng, T. Ying, H. Weiqui and D. Youxian, *Composites Science and Technology*, **34**, 353 (1989).
11. B. S. Jin, K. H. Lee and C. R. Choi, *Polymer International*, **34**, 181 (1994).
12. H. Yasuda, *Plasma Polymerization*, Academic Press, New York (1985).
13. G. Dagli and N. H. Sung, *Polymer Composites*, **10**, 109 (1989).
14. N. Dilsiz, E. Ebert, W. Weisweiler, and G. J. Akovali, *Journal of Colloid Interface Science*, **170**, 1 (1995).
15. S. Feih and P. Schwartz, *Journal of Adhesion Science and Technology*, **12**, 523 (1998).
16. L. Y. Yuan, S. S. Shyu, and J. Y. Lai, *Composites Science and Technology*, **45**, 9 (1992).
17. Y. L. Zou and A. N. Netravali, *Journal of Adhesion Science and Technology*, **9**, 1505 (1995).
18. N. Lopattananon, A. P. Kettle, D. Tripathi, A. J. Beck, E. Dural, R. M. France, R. D. Short and I. R. Jones, *Composites, Part A*, **30**, 49 (1999).
19. S. Eufinger, W. J. van Ooij and K. K. Conners, *Surface and Interface Analysis*, **24**, 841 (1996).
20. Y. M. Tsai, F. J. Boerio, W. J. Van Ooij and Dong K. Kim, *Journal of Adhesion*, **62**, 127 (1997).
21. Y. M. Tsai, F. J. Boerio, W. J. van Ooij, Dong K. Kim and Thomas Rau, *Surface and Interface Analysis*, **23**, 261 (1995).
22. Y. M. Tsai and F. J. Boerio, *Journal of Adhesion*, **55**, 151 (1995).
23. Y. M. Tsai, F. J. Boerio and Dong K. Kim, *Journal of Adhesion*, **61**, 247 (1997).
24. Y. M. Tsai, U. R. Aggarwal, F. J. Boerio, D. B. Zeik, S. J. Carson, W. J. van Ooij and A. Sabata, *Applied Polymer Science: Applied Polymer Symposium*, **54**, 3 (1994).
25. H. M. Kang, K. H. Chung, S. Kaang and T. H. Yoon, *Journal of Adhesion Science and Technology*, **15**, 467 (2001).