

BTDA-APAB 폴리이미드의 알루미늄과의 접착 특성에 관한 연구

장 정 식[†] · 이 정 훈 · 안 병 현*

서울대학교 공과대학 공업화학과, *부경대학교 공과대학 재료공학과
(1996년 12월 9일 접수)

A Study on the Adhesion Properties of BTDA-APAB Polyimide on Aluminum Surfaces

Jyongsik Jang[†], Jeunghoon Lee, and Byong-Hyun Ahn*

Department of Chemical Technology, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea

*Department of Material Science, Bukyung University

(Received December 9, 1996)

요약: 폴리이미드와 알루미늄의 접착 특성을 연구하기 위하여 dianhydride 단량체로 BTDA (3,3', 4,4' -benzophenonetetracarboxylic dianhydride), diamine 단량체로 APAB (3-aminophenyl 3-aminobenzoate)를 사용하여 용액 축중합법으로 BTDA-APAB 폴리이미드를 합성하였다. 폴리이미드와 알루미늄의 접착력을 측정하기 위하여 접착 온도의 변화에 따른 lap shear 강도를 측정하였고, peel test로 접착 에너지를 측정하였다. 계면 특성을 고찰하고자 FTIR 분석, SEM 분석, 접촉각 측정을 행하였다. FTIR 분석을 통하여 폴리이미드와 알루미늄간의 화학결합의 존재와 그 결합의 세기가 온도에 따라 증가하는 경향을 확인하였다. Lap shear test와 peel test 결과, 폴리이미드와 알루미늄 사이의 접착력은 290 °C에서 최대값을 나타내었다.

ABSTRACT: In order to study the adhesion characteristics between polyimide and aluminum, BTDA-APAB polyimide was synthesized by solution polymerization using BTDA as a dianhydride monomer and APAB as a diamine monomer. In order to measure the adhesion strength between the polyimides and aluminum, lap shear test was performed with the different bonding temperatures and adhesion energy was measured by peel test. In addition, FTIR analysis, SEM analysis, and contact angle measurement were performed to investigate interfacial characteristics between polyimide and aluminum. Adhesion strength between polyimide and aluminum showed the maximum at 290 °C. It was confirmed by FTIR analysis that there exist chemical interactions between polyimide and aluminum, and the strength of interaction increases as temperature increases.

Keywords: polyimide, adhesion energy, lap shear strength, FTIR, imidization temperature.

서 론

폴리이미드는 우수한 기계적 강도, 낮은 유전 상수를 갖는 내열성 고분자로서 우주항공 산업, 극소전자 산업 (microelectronics)에 널리 응용되고 있다.¹⁻⁴ 특히 우주항공 분야에의 응용에 있어서는 구조용 접착제, 복합재료 매트릭스로 이용되는데 상용 항공기의

엔진 부근, 고속 항공기의 구조재의 경우 극단적인 온도차이를 견뎌야 한다. 극소전자 산업분야에서는 가공 공정 중에 온도가 400 °C에 이르기도 한다. 이런 응용에 있어서는 금속과 접촉되어 있는 고분자 막이 열팽창 계수 차에 의한 강한 열 응력을 받게 되므로 금속과의 강한 접착력이 요구된다.⁵

이러한 고성능 폴리이미드 접착제는 부가형

(addition type)과 축합형 (condensation type)으로 나눌 수 있다. 부가형 폴리이미드 접착제는 폴리이미드 oligomer 말단에 acetylene, norbornene 등의 중합 가능한 관능기를 도입하여 성형 후에 가교시킴으로써 가공이 쉬운 장점을 가지고 있으나, 내열성과 기계적 강도가 떨어지는 단점이 있다. 반면 축합형 폴리이미드는 우수한 내열성과 기계적 물성을 보이지만, 높은 녹는점으로 인해 가공시 높은 온도가 필요하고 용융점도가 높아 접착제와 접착물 사이의 완벽한 접착을 이루기 힘든 단점을 가지고 있다.⁶

축합형 폴리이미드의 이와 같은 단점을 개선하기 위하여 폴리이미드 주사슬에 ether, ester, ketone, sulfone 등의 flexible linkage를 도입하거나 부피가 큰 관능기를 도입하여 내열성을 크게 감소시키지 않으면서 가공성을 향상시키기 위한 연구가 이루어져 왔다.⁷⁻⁹

폴리이미드와 금속 사이의 접착 메카니즘은 자세히 알려져 있지 않다. 폴리이미드와 구리 사이의 접착에서는 구리가 폴리아미산의 카르복실산 관능기와 착화합물을 형성하여 폴리아미산의 이미드화를 방해하면서 상호작용을 일으킨다. 그러나 폴리아미산 용액이 구리를 녹여 내어 구리 이온이 폴리이미드층 내부에서 응집되어 구리 cluster를 형성함으로써 폴리이미드층의 기계적 물성이 저하되는 원인이 되기도 한다.¹⁰⁻¹³

알루미늄의 경우는 구리보다 반응성이 적은 것으로 알려져 있으나, Flament 등은 PMDA-ODA 폴리이미드-알루미늄 계면에서의 화학결합 여부를 XPS로 고찰하여 PMDA-ODA 폴리이미드와 알루미늄의 화학결합 형태를 제안한 바 있으며, Selmani는 C-O-Al complex의 modeling에 의해 carbonyl group과 알루미늄과의 결합을 연구한 바 있다.^{14,15}

본 연구에서는 BTDA-APAB 폴리이미드와 알루미늄의 접착 특성을 고찰하고 최적 조건을 확립하기 위하여 접착 온도를 변화시켜 접착력을 측정하였고, 폴리이미드-알루미늄 계면의 형태학적, 화학적 특성 분석을 수행하였다. Dianhydride 단량체로 3,3',4,4'-benzophenonetetra-carboxylic dianhydride (BTDA), diamine 단량체로 ester linkage를 갖는 3-aminophenyl 3-aminobenzoate (APAB)를 사용하여 용액 축중합법으로 폴리아미산을 합성하였다. 알루미늄과의 접착력을 lap shear test와 peel test로 측정하였

고, 적외선 분광 분석, 주사 전자 현미경 SEM (scanning electron microscopy), 접촉각 측정으로 계면 특성을 고찰하였다.

실 험

시약. 중합 용매로 쓰인 *N*-methyl-2-pyrrolidinone (NMP, Aldrich Chem. Co.)는 오산화인으로 탈수시킨 뒤 감압 증류하였다. Dianhydride 단량체인 3,3',4,4'-benzophenone-tetracarboxylic dianhydride (Aldrich)는 무수 아세트산에서 재결정하였고, diamine 단량체인 3-aminophenyl 3-aminobenzoate는 에탄올에서 재결정하였다.

폴리아미산 합성. NMP 용매에 diamine 단량체를 먼저 녹인 후 dianhydride 단량체로 쓰인 BTDA를 수 차례에 나누어 반응 혼합물에 투입하였다. 고형물의 농도는 15%로 고정하였다. 반응은 ice-water bath에서 질소 분위기에서 18시간 동안 진행되었다. 이렇게 얻어진 폴리아미산은 사용할 때까지 냉장 보관하였다. 본 연구에서 사용된 폴리아미산의 합성 과정을 Fig. 1에 나타내었다.

Lap Shear Strength 측정. Lap shear strength 측정 시편을 제조하기 위하여 접착 테이프를 제조하였다. γ -APS 처리된 E-glass fabric에 폴리아미산 용액을 도포하고 용매 및 기타 휘발 성분을 제거하고 폴리아미산의 이미드화를 위하여 100 °C에서 1시간, 150, 175 °C에서 각각 30분간 처리하였다. 접착테이프의 두께가 0.25 mm가 될 때까지 위 과정을 반복하였다.

알루미늄판 (두께 1.5 mm)은 접착면을 연마적으로 연마하고, 메탄올로 초음파 세척 후 묽힌 폴리아미산 용액으로 코팅하여 100 °C에서 30분, 150 °C에서 30분 동안 열처리 하였다.

Lap shear strength 측정 시편은 폴리이미드가 코팅된 판 사이에 접착 테이프를 넣고 온도와 압력을 가하여 제조하였다. 5 °C/min의 승온 속도로 상온에서 접착 온도까지 올린 뒤 1시간 유지시켰으며, 압력은 500 psi를 가하였다. Lap shear strength의 측정은 ASTM D1002에 의거하여 만능 시험기 (universal testing machine, UTM)로 측정하였다.¹⁶

접착 에너지 측정. 알루미늄 foil에 폴리아미산 용

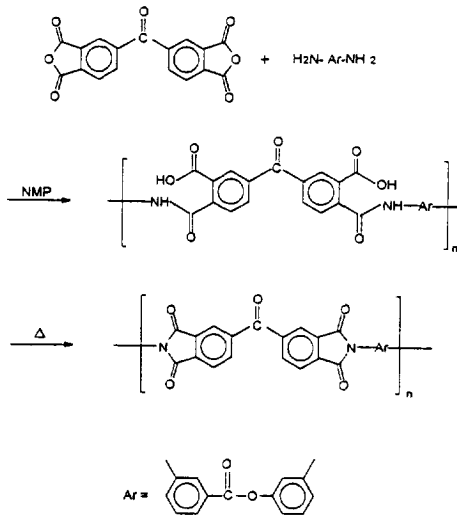


Figure 1. Synthesis of BTDA-APAB polyimides.

액을 코팅한 뒤 lap shear strength 시편을 제작할 때와 같은 온도 조건으로 처리하였다. 이렇게 얻어진 폴리이미드가 코팅된 알루미늄 foil을 5 mm 너비로 자르고 Fig. 2에서 보는 것과 같이 폴리이미드 면을 epoxy 접착제로 고정시켜 180° 각도로 측정하였다. 다음 식을 이용하여 접착 에너지, G_a 를 구하였다.

$$G_a = F/W \quad (1)$$

여기서 F 는 peel force이며 W 는 시편 폭이다. Peel rate는 5 mm/min이었다.

적외선 분광 분석. 폴리이미드-알루미늄 계면의 특성을 고찰하기 위하여 FTIR 분석을 행하였다. BOMEM MB-100기종을 이용하여 resolution 4 cm^{-1} , scan 100회의 조건으로 스펙트럼을 얻었다. 알루미늄으로부터 벗겨낸 폴리이미드 표면의 스펙트럼을 게르마늄 cell을 이용하여 ATR (attenuated total reflectance) 스펙트럼을 얻었다.

접촉각 측정. Peeled 폴리이미드 필름의 양쪽면, 즉 알루미늄 접촉면 (interface)과 공기 접촉면 (bulk)을 증류수를 이용하여 접촉각을 측정하였다. Advance mode로 증류수를 $10\ \mu\text{L}$ 떨어뜨려 접촉각을 측정하였다. 기기는 Ramé-Hart사의 NRL contact angle goniometer를 사용하였다.

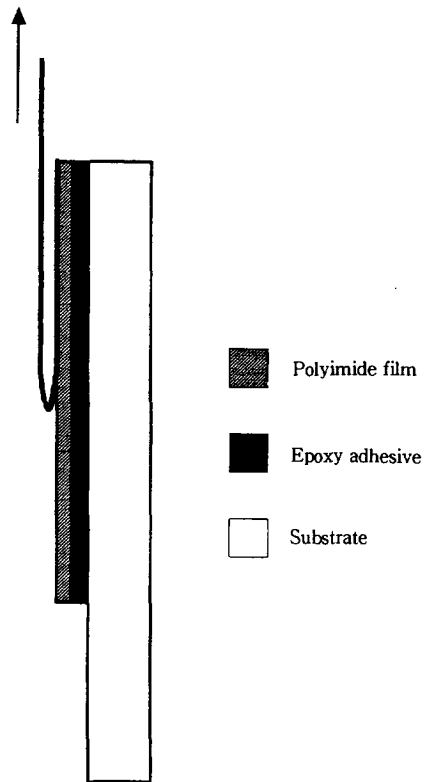


Figure 2. A schematic representation of adhesion energy measurement.

주사 전자 현미경 분석. 폴리이미드-알루미늄 계면의 형태학적 고찰을 위하여 폴리이미드를 알루미늄에서 벗겨낸 뒤 접착표면을 SEM으로 관찰하였다. 사용 기종은 Jeol사의 JSM-35이다.

열분석. 폴리이미드의 열적 거동을 살펴보기 위하여 Perkin-Elmer DSC-4 기종을 이용해서 $20\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 scanning rate로 시차주사 열량분석을 행하여 유리전이온도를 관찰하였고, 열적 안정성을 관찰하기 위하여 열중량 분석 (TGA)을 DuPont 2100 기종을 사용하여 air 상에서 수행하였다.

결과 및 고찰

BTDA-APAB 폴리이미드의 유리전이온도는 DSC로 분석한 결과 $247\text{ }^\circ\text{C}$ 였다. Fig. 3은 BTDA-APAB 폴리이미드의 DSC thermogram을 나타낸다. 일반적으로 가장 많이 사용되는 PMDA-ODA

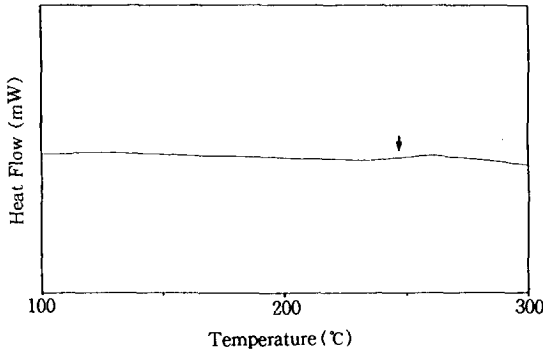


Figure 3. DSC thermogram of BTDA-APAB polyimide.

Table 1. Adhesion Energy of BTDA-APAB/Aluminum with Different Bonding Temperature

imidization temperature (°C)	adhesion energy (N/m)
175	218
260	641
290	852
320	728

폴리이미드의 유리전이온도가 400 °C 이하에서 관찰되지 않는 것에 비교하면 상대적으로 상당히 낮은 온도에서 유리전이가 일어나는 것이며, 이는 가공성 향상과 연관지을 수 있다. 이와 같은 열적특성은 BTDA의 ketone기와 APAB의 ester기의 유연성으로 인하여 고분자 사슬의 운동이 비교적 낮은 온도에서도 쉽게 일어나기 때문으로 사료된다.

Table 1은 peel test로 측정한 서로 다른 이미드화 온도에 따른 BTDA-APAB 폴리이미드와 알루미늄 사이의 접착 에너지 변화를 나타내고 있다. 접착 에너지는 260 °C 이상에서 이미드화 시켰을 때 급격히 증가하고 290 °C에서 최대값을 보인다.

Fig. 4는 BTDA-APAB의 알루미늄 접촉면의 FTIR-ATR 스펙트럼이다. 주요 피크의 assignment는 Table 2에 요약되어 있다. 보다 자세한 assignment는 여러 문헌에 제시되어 있다.^{17,18} 스펙트럼 (A)와 비교해 보았을 때, (B), (C), (D)의 스펙트럼에서는 1740 cm⁻¹에서 새로운 피크가 shoulder 형태로 나타난다. 1740 cm⁻¹에서 나타나는 피크는 BTDA의 anhydride 고리가 열리면서 생성된 ester에 의한 것이다. 또한 이미드화 온도가 증가할수록 1670 cm⁻¹에서 나타나는 BTDA의 C=O stretching

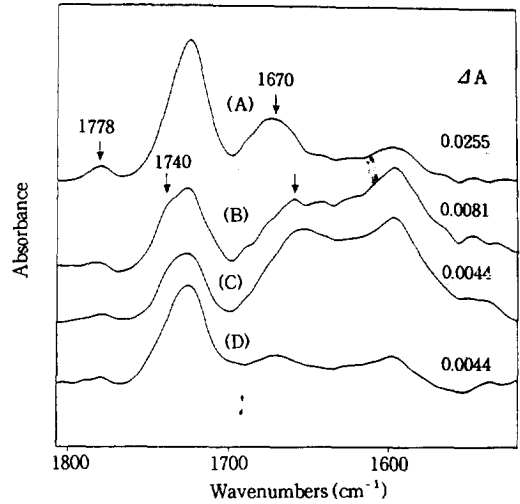


Figure 4. FTIR-ATR spectra of BTDA-APAB/aluminum interface with different imidization temperatures : (A) 175 °C, (B) 260 °C, (C) 290 °C, and (D) 320 °C.

Table 2. IR Band Assignments of BTDA-APAB

peak position (cm ⁻¹)	probable assignments
1778	ν (C=O) imide[in-phase]
1740	ν (C=O) ester
1724	ν (C=O) imide[out-of-phase]
1670	ν (C=O)-phenyl

에 의한 피크는 1660 cm⁻¹ 쪽으로 이동하는 것을 확인할 수 있다. 1778 cm⁻¹에 나타나는 이미드 고리의 C=O stretching 피크의 크기도 감소하고 있다. 320 °C에서 이미드화 시킨 BTDA-APAB의 스펙트럼에서는 1700 cm⁻¹ 이하 영역의 피크 세기가 감소하고 있는데 이는 알루미늄과의 계면 근처에 있는 폴리이미드의 열분해에 의한 영향으로 사료된다.

이미드화 온도에 따른 접착 에너지의 변화는 위에서 언급한 스펙트럼의 변화로써 설명할 수 있다. Ester기의 존재는 이미드 고리와 알루미늄 표면의 hydroxyl기 사이에 화학결합이 존재함을 의미한다. 1778 cm⁻¹의 이미드 C=O stretching 피크 크기의 감소는 화학결합이 이미드 고리가 깨지면서 일어나는 것을 보여준다. 또한, 1670 cm⁻¹의 피크가 낮은 에너지 영역으로 이동하는 것은 BTDA의 carbonyl기가 알루미늄 표면의 hydroxyl기와 수소결합과 흡사한 상호작용을 일으키는 것을 나타낸다. Carbonyl기와

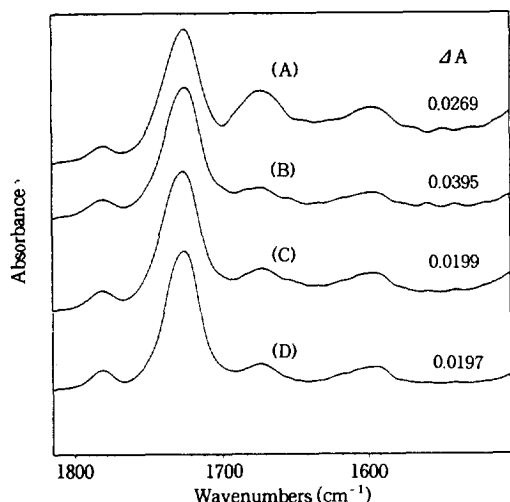


Figure 5. FTIR-ATR spectra of BTDA-APAB film with different imidization temperatures : (A) 175 °C, (B) 260 °C, (C) 290 °C, and (D) 320 °C.

hydroxyl기가 상호작용을 일으키면 carbonyl기의 전자 밀도가 감소해서 흡수 피크가 낮은 에너지 영역으로 이동하게 된다.

Fig. 5는 알루미늄과 접촉하지 않은 BTDA-APAB의 FTIR-ATR 스펙트럼이다. 이미드화 온도에 따른 스펙트럼의 차이가 거의 보이지 않고, 주목할 만한 점은 스펙트럼들이 Fig. 4(A)와 유사한 형태를 가지고 있다는 점이다. 이는 175 °C에서 이미드화가 진행되었을 때 폴리이미드와 알루미늄간의 상호작용이 거의 없다는 것을 의미한다.

175 °C에서 이미드화가 일어날 때, 끓는점이 202 °C인 용매 NMP는 완전히 제거되지 않는다. 제거되지 않은 잔존 용매는 폴리이미드 사슬과 착물을 이루어 알루미늄과의 작용을 방해하게 된다. 용매의 완전한 제거는 250 °C 이상에서 가능하다.^{19,20}

Fig. 6과 Fig. 7은 각각 175 °C, 250 °C에서 이미드화 시킨 BTDA-APAB 필름의 TGA 결과이다. 250 °C에서 이미드화가 일어난 경우에 비해서, 175 °C에서 이미드화가 일어난 경우에는 약 200~300 °C의 온도 범위에 걸쳐서 중량 감소를 나타내는데, 이것은 폴리이미드 사슬에 결합하고 있는 NMP가 제거되면서 생기는 중량 감소이다. 또한 250 °C에서 이미드화 시킨 필름의 열 안정성이 175 °C에서 이미드화 시킨 필름의 열 안정성보다 우수한 것은 폴리이미

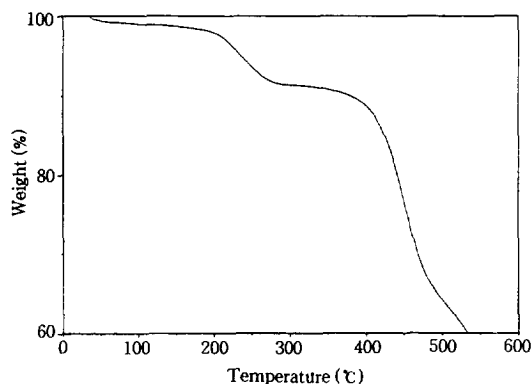


Figure 6. TGA thermogram of BTDA-APAB film imidized at 175 °C.

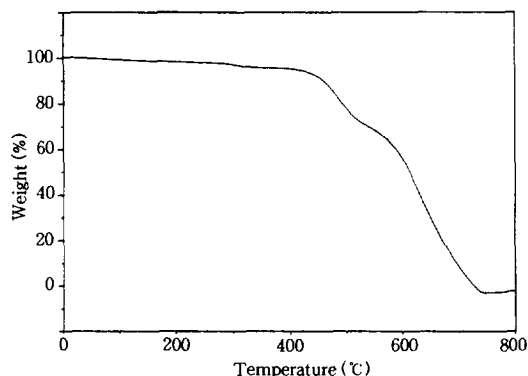


Figure 7. TGA thermogram of BTDA-APAB film imidized at 250 °C.

드 사슬에 결합하고 있는 NMP가 폴리이미드와 고온에서 transamidation 반응을 일으켜 분자량을 감소시키는 역할을 하기 때문이다.²¹

앞에서 살펴본 바에 의하면 이미드화 온도가 높아질수록 폴리이미드와 알루미늄간의 상호작용은 커진다. 그러나 접착 에너지는 320 °C에서 이미드화 시켰을 때 오히려 감소하는 경향을 보인다. 이것은 온도가 증가할수록 폴리이미드와 알루미늄 사이의 열팽창 계수 차에 의한 열 응력이 증가하기 때문이라고 생각된다. 폴리이미드와 알루미늄의 화학적 상호작용 효과와 열 응력 효과가 합쳐져서 290 °C에서 최대 접착력을 보이게 된다.

접착 에너지에 영향을 주는 또 하나의 요인은 계면 부근의 폴리이미드의 기계적 강도이다. 폴리이미드와

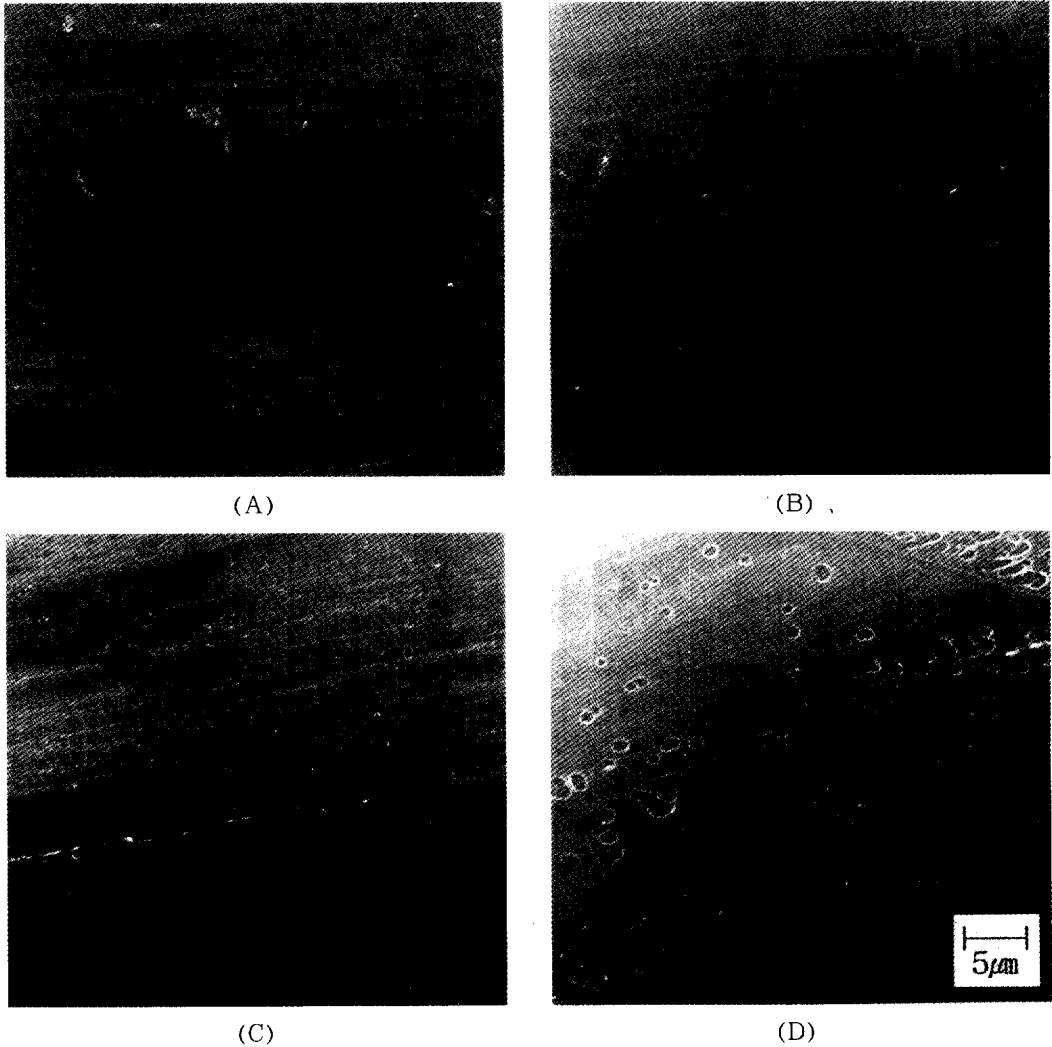


Figure 8. SEM photographs of peeled BTDA-APAB surfaces with different imidization temperatures : (A) 175 °C, (B) 260 °C, (C) 290 °C, and (D) 320 °C.

알루미늄 사이의 화학적 상호작용은 이미드고리가 열리면서 발생하기 때문에 계면 부근의 폴리이미드의 cohesive strength가 감소하게 되고, 또한 열적 안정성도 감소되어 weak boundary를 형성할 수 있다. BTDA-APAB의 경우도 320 °C에서 이미드화시켰을 경우 위에서 언급한 바와 같은 현상이 일어나 접착 에너지 감소의 한 가지 요인이 되었을 것으로 생각된다. Greenblatt 등에 의하면, 접착 향상제인 γ -APS를 사용하였을 때 일어나는 폴리이미드 사슬의 끊어짐이 계면 부근의 cohesive strength를 감소시

켜 접착에 좋은 효과를 주지 못하는 것으로 알려져 있다.²²

Fig. 8은 알루미늄에서 벗겨낸 BTDA-APAB 표면의 SEM 사진이다. 사진 (B), (C), (D)에서는 줄무늬 형태를 관찰할 수 있다. 이 줄무늬는 peel crack이 불연속적인 과정에 의하여 진행하였음을 나타내는데, 이는 계면 사이에 강한 결합이 존재함을 의미한다.²³ 이미드화 온도가 높아질수록 표면의 줄무늬 형태가 강하게 나타나는 것을 관찰할 수 있으며, 320 °C에서 이미드화 시킨 필름의 표면에서는 폴리

Table 3. Contact Angle of Peeled Surface of BTDA-APAB/Aluminum

imidization temperature(°C)	interface	bulk
175	43	70
260	42	76
290	49	73
320	50	71

Table 4. Lap Shear Strength of BTDA-APAB/Aluminum with Different Bonding Temperature

bonding temperature (°C)	lap shear strength (MPa)
220	5.55
260	6.22
290	7.16
320	2.67

이미드 내부에서 상당한 정도의 cohesive failure가 일어나는 것을 관찰할 수 있다. 폴리이미드와 알루미늄 간의 상호작용에 의하여 폴리이미드의 cohesive strength가 감소한다는 것은 이전에 언급한 바 있다. 이 때, 이미드 고리가 열리면서 폴리이미드의 열 안정성도 함께 저하되는데, 처리 온도가 높아지게 되면 알루미늄과 인접한 열 안정성이 낮은 부위에서 cohesive failure가 일어나는 것으로 추측된다.

Table 3은 BTDA-APAB 폴리이미드의 알루미늄과의 접착면, 그리고 알루미늄과 접하지 않은 bulk 표면의 접촉각 측정결과를 보여주고 있다. 폴리이미드의 알루미늄 접착면의 접촉각이 bulk 표면보다 작게 나타나는 것은 폴리이미드와 알루미늄 사이의 극성 상호작용(polar interaction)에 의하여 표면이 극성을 띠게 되기 때문이라고 생각된다. 그리고, 이미드화 온도가 290 °C 이상일 때 알루미늄과 접착면의 접촉각이 커지는 것은 폴리이미드와 알루미늄의 결합에 의해 locus of failure가 폴리이미드 내부에 존재하여 표면의 극성이 감소하기 때문이다.

Table 4는 접착 온도에 따른 BTDA-APAB와 알루미늄의 lap shear strength의 변화를 나타낸다. 접착 에너지와 마찬가지로 lap shear strength도 290 °C에서 최대값을 보인다. 그러나, 320 °C에서 접착이 이루어졌을 경우, 접착력 감소 폭이 peel test에서 나타난 접착 에너지 감소 폭보다 더 크게 나타나고 있다. 이는 lap shear strength 값이 BTDA-APAB의 열분해로 인하여 감소된 bulk property에

크게 영향을 받는 반면에 peel test로부터 얻는 접착 에너지는 거의 전적으로 구리와 폴리이미드의 계면 결합력에 영향을 받기 때문이다.

결 론

적외선 분광 분석을 통하여, 합성한 BTDA-APAB 폴리이미드가 알루미늄과 이루는 화학결합의 특성을 파악하였다. 폴리이미드와 알루미늄 사이의 화학결합은 접착 온도가 높아짐에 따라 증가하고, 이에 따라 접착력도 증가되지만, 높은 온도에서는 폴리이미드와 알루미늄의 열팽창 계수의 차이와 알루미늄 근처에 있는 폴리이미드의 기계적 물성 저하로 인하여 접착력이 감소된다. 폴리이미드와 알루미늄 사이의 lap shear strength 측정과 peel test 측정 결과, 접착 온도가 290 °C일 때 최대 접착력과 접착 에너지를 나타내었다. 측정된 접착력과 접착 에너지의 값으로부터 BTDA-APAB의 알루미늄에 대한 새로운 접착제로서의 가능성을 생각할 수 있다.

참 고 문 헌

1. L. P. Buchwalter, *J. Adhesion Sci. Technol.*, **4**, 697 (1990).
2. K. M. Chen, S. M. Ho, T. H. Wang, J. S. King, W. C. Chang, R. P. Cheng, and A. Hung, *J. Appl. Polym. Sci.*, **45**, 947 (1992).
3. M. I. Bessonov, M. M. Koton, V. V. Kudryavtzen, and L. A. Laius, "Polyimides: Thermally Stable Polymers", 2nd ed., p. 271, Plenum, New York, 1987.
4. A. K. St. Clair and T. L. St. Clair, "Polyimides", ed. by K. L. Mittal, vol. II, p. 977, Plenum Press, New York, 1984.
5. P. M. Hergenrother, in "Polyimides", D. Wilson, Ed., p. 158, Blakie, London, 1990.
6. T. Takekoshi and J. M. Terry, *Polymer*, **35**, 4874 (1994).
7. D. J. Progar and T. L. St. Clair, *J. Adhesion*, **30**, 185 (1989).
8. D. J. Progar and T. L. St. Clair, *J. Adhesion Sci. Technol.*, **4**, 527 (1990).
9. M. Acevado and F. W. Harris, *Polymer*, **35**, 4456 (1994).

10. M. C. Burrell, P. J. Codella, J. A. Fontana, and J. J. Chera, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A7**, 1778 (1989).
11. M. C. Burrell, P. J. Codella, J. A. Fontana, J. J. Chera, and M. D. McConnell, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A7**, 55 (1989).
12. D-Y. Shih, J. Paraszczac, N. Klymko, R. Flitsch, S. Nunes, J. Lewis, C. Yang, J. Cataldo, R. McGouey, W. Grajam, R. Serino, and E. Galligan, *J. Vac. Sci. Technol.*, **A7**, 1402 (1989).
13. J. T. Young and F. J. Boerio, *Surface and Interface Analysis*, **20**, 341 (1993).
14. O. Flament, J. Russat, and E. Druet, *J. Adhesion Sci. Technol.*, **4**, 109 (1990).
15. A. Selmini, in "Metallization of Polymers", E. S. Sacher, J.-J. Pireaux, S. P. Kowalczyk, Eds., p. 344, American Chemical Society, Washington DC, 1990.
16. ASTM D1002-72, "Standard Test Method for Strength Properties of Adhesives in Shear by Tension Loading", ASTM, Philadelphia, PA, 1982.
17. J. T. Young, W. H. Tsai, and F. J. Boerio, *Macromolecules*, **25**, 887 (1992).
18. H. Ishida and M. T. Huang, *J. Polym. Sci., Polym. Phys. Ed.*, **32**, 2271 (1994).
19. K. M. Chen, T. H. Wang, J. S. King, and A. Hung, *J. Appl. Polym. Sci.*, **48**, 291 (1993).
20. T. J. Hsu and Z. Liu, *J. Appl. Polym. Sci.*, **46**, 1821 (1992).
21. A. K. St. Clair and T. L. St. Clair, in "Polyimides", K. L. Mittal, Ed., vol. 2, p. 977, Plenum Press, New York, 1984.
22. J. Greenblatt, C. J. Araps, and H. R. Anderson, in "Polyimides", K. L. Mittal, Ed., vol. 1, p. 573, Plenum Press, New York, 1984.
23. V. I. Kolegov and S. Ya. Frenkel, *Polym. Sci. USSR*, **A18**, 1919 (1976).