<연구논문>

한국표면공학회지
J. Kor. Inst. Surf. Eng.
Vol. 45, No. 1, 2012.

<http://dx.doi.org/10.5695/JKISE.2012.45.1.008>

알카리 표면개질 처리가 무전해 구리 도금피막과 폴리이미드 필름의 접합력에 미치는 효과

손이슬, 이호년, 이흥기*

한국생산기술연구원 인천지역본부 열표면기술센터

Effect of Alkali Surface Modification on Adhesion Strength between Electroless-Plated Cu and Polyimide Films

Lee-Seul Son, Ho-Nyun Lee, Hong Kee Lee*

Heat Treatment & Plating Technology Center, Incheon Regional Division,
Korea Institute of Industrial Technology 7-47, Songdo-Dong, Yeonsu-gu, Incheon 406-840, Korea

(Received January 20, 2012 ; revised February 14, 2012 ; accepted February 28, 2012)

Abstract

The effects of the alkali surface modification process on the adhesion strength between electroless-plated Cu and polyimide films were investigated. The polyimide surfaces were effectively modified by alkali surface treatments from the hydrophobic to the hydrophilic states, and it was confirmed by the results of the contact angle measurement. The surface roughness increased by alkali surface treatments and the adhesion strength was proportional to the surface roughness. The adhesion strength of Cu/polyimide interface treated by KOH + EDA (Ethylenediamine) was 874 gf/cm which is better than that treated by KOH and KOH + KMnO_4 . The results of XPS spectra revealed that the alkali treatment formed oxygen functional groups such as carboxyl and amide groups on the polyimide films which is closely related to the interfacial bonding mechanism between electroless-plated Cu and polyimide films. It could be suggested that the species and contents of functional group on polyimide films, surface roughness and contact angle were related with the adhesion strength of Cu/polyimide in combination.

Keywords: Polyimide, Electroless copper, Surface modification, Adhesion

1. 서 론

폴리이미드 필름은 고성능 내열성 고분자로 우수한 열적안정성, 기계적 강도 및 내화학성을 지니고 있으며 유전율이 낮아 반도체 절연막, 전기절연체, FPC(Flexible Printed Circuit) 등에 널리 활용되고 있다^{1,2)}. 그러나 폴리이미드의 경우 이미드링의 특성상 표면의 극성이 낮아 다른 고분자 물질이나 금속, 세라믹 등과의 접합력이 떨어져 폴리이미드의 표면 개질을 통하여 접착성을 개선하기 위한 연구가 집중적으로 수행되어 왔다³⁾.

폴리이미드의 표면개질방법으로는 플라즈마 처리⁴⁾, 이온빔 처리⁵⁾, 암모니아 처리⁶⁾ 등의 건식방법과 KOH⁷⁾, NaOH, 아민 수용액⁸⁾ 등에 의한 습식처리방법 등이 있다. 습식 표면처리에 의한 폴리이미드 필름의 금속화 처리는 재현성이 낮으며, 금속층과 폴리이미드 표면과의 낮은 접합력 등 물성특성이 시장요구 조건에 부합되지 않아 제품 적용에는 아직까지 많은 문제점을 내포하고 있다. 그러나 단순한 공정 및 설비, 낮은 원가, 높은 생산성과 균일한 금속 피막층 형성 등의 장점이 있어 습식표면처리를 통한 금속과 폴리이미드 계면사이의 접합력 향상에 관한 연구가 활발히 이루어지고 있다⁹⁾.

폴리이미드와 KOH 등의 알카리 수용액과의 표

*Corresponding author. E-mail : schwein@kitech.re.kr

Fig. 1. The ring-opening reaction of the PMDA-ODA polyimide film by KOH treatment¹²⁾.

면반응은 그림 1에서와 같이 처음에는 가수분해에 의해 이미드링이 불안정한 상태로 개환이 되고 polyamate 상태가 된다. 이를 염산으로 protonate 시키면 polyamate가 polyamic acid로 안정한 상태가 된다^{10,11,12)}. 이렇게 개환된 상태에서는 형태 변형성이 생길뿐만 아니라 말단의 아민기나 아미드기의 극성과 수소 결합에 의해 폴리이미드 표면의 극성이 증가하기 때문에 접합력이 향상될 뿐만 아니라 폴리이미드 본래의 우수한 물성들도 지니게 된다.

기존의 연구에서는 습식 표면처리를 통한 폴리이미드 표면의 화학결합 구조의 변화에 대한 분석 및 고찰이 주로 이루어져 왔으며, 습식 표면처리가 금속과 폴리이미드 사이의 계면 접합력에 미치는 영향과 평가에 대한 연구는 충분히 이루어져 있지 않다. 따라서 본 연구에서는 KOH 단독처리, KOH와 EDA 및 KMnO₄ 혼합용액처리를 이용하여 폴리이미드 표면을 개질시키고, 개질된 폴리이미드 표면의 형상 및 결합구조의 변화, 표면조도, 접촉각 등이 무전해 구리 도금피막과 폴리이미드 사이의 계면 접합력에 미치는 영향에 대해 연구하였다.

2. 실험방법

2.1 폴리이미드 필름의 습식표면개질

폴리이미드 필름은 pyromellitic dianhydride-

oxydianiline (PMDA-ODA)을 단량체로한 미국 DuPont사의 Kapton HN 25 μ m 필름을 사용하였으며, 폴리이미드 표면의 오염 성분 제거를 위해 아세톤으로 30초간 초음파 세척을 하였다. 폴리이미드의 표면개질은 10 cm $\times$ 10 cm 크기의 필름에 표면개질, 수세, 중성화, 수세, 촉매, 수세, 활성화 순서로 진행하였으며, 마지막으로 개질된 폴리이미드 표면에 무전해 구리도금을 수행하였다. 표면개질 공정의 경우, 1M KOH 단독처리와 더불어 KOH와 0.9M EDA 또는 0.1M KMnO₄ 혼합용액을 사용하여 처리하였으며, 50°C로 온도를 고정하고 5분간 처리하였다. 중성화 공정은 0.2M HCl에서 5분간 처리하였으며, 촉매와 활성화 공정은 SnCl₂와 PdCl₂를 이용하여 실온에서 각각 4분, 2분간 처리하였다. 개질된 폴리이미드 표면에는 황산구리 용액(10 g/l)에 포름알데히드(20 ml/l)를 환원제, 롯셀염(50 g/l)을 착화제, 수산화나트륨을 pH 조절제로 첨가한 무전해 구리 도금액을 사용하여 pH 12.5에서 10분간 도금을 수행하였다.

2.2 폴리이미드 필름의 접촉각 측정 및 표면 분석

접촉각은 필름 표면에 증류수를 떨어뜨려 필름과 증류수가 공기에 접하는 삼중점에 초점을 맞추어 CRUSS사의 DSA 10 Mk2 접촉각 측정기를 사용하여 측정하였다. 도금된 폴리이미드의 단면형상을 관찰하기 위하여 FIB-SEM(Focused Ion Beam - Scanning Electron Microscopy, NOVA 600, NORAN)을 사용하였으며, 개질된 폴리이미드의 표면조도를 정량화하기 위해 AFM(Atomic Force Microscopy, Nano-R, Pacific nanotechnology Inc.)을 이용하여 5 μ m $\times$ 5 μ m의 면적에서 RMS(Root Means Square) 값을 측정하였다. 전처리 과정에 따른 표면의 원소 및 결합구조를 관찰하기 위해 XPS(X-ray Photoelectron Spectroscopy, Multilab 2000, Thermo VG Scientific)를 사용하였으며, Al-K α (1486.6 eV)을 사용하여 C 1s의 C-C 결합(284.7 eV)을 기준으로 피크를 보정하였다.

2.3 폴리이미드 필름과 구리사이의 접합력 측정

구리와 폴리이미드 필름 사이의 접합력을 측정하기 위하여 무전해 도금을 수행한 시편에 구리 전기도금을 통하여 구리 도금피막의 두께를 20 μ m로 증가시켰다. 구리 전기도금은 CuSO₄ 용액에 H₂SO₄, HCl, 첨가제를 넣고 충분히 교반시킨 후 전류밀도를 25 mA/cm², 2.5 cm의 극간거리를 유지하여 40분간 실시하였다. 접합력 측정은 Universal Testing Machine, Instron 3344로 180° peel 테스트 방법으

로 crosshead 속도 50.8 mm/min에서 폴리이미드 필름과 구리 도금피막 간의 접합력을 측정하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 습식표면개질에 따른 폴리이미드 표면의 접촉각 변화

고분자 소지에 무전해도금 공정을 통하여 금속막을 형성하기 위해서는 소재의 표면에 친수성을 부여하여 팔라듐이 흡착될 수 있도록 표면처리를 진행해야 한다. 따라서 본 연구에서는 폴리이미드 필름에 KOH, KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO_4 혼합용액을 사용하여 폴리이미드 표면을 개질한 후, 접촉각을 측정하였으며 그림 2에 나타내었다. 미처리된 폴리이미드의 경우 접촉각은 77.2° 였으며, KOH, KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO_4 혼합용액을 사용하여 표면개질을 수행한 경우에는 각각 28° , 63.6° , 47.4° 로 접촉각이 감소한 것을 확인할 수 있었다. 접촉각의 감소는 폴리이미드 표면의 이미드링 개환으로 인하여 극성이 강해지고 수소결합을 유발할 수 있는 아민기와 아미드기가 생성되어 극성인 증류수와 친화력이 증가하였기 때문으로 판단된다.

3.2 습식 표면개질에 따른 폴리이미드 표면의 조도 변화

폴리이미드 표면의 개질시 에칭효과를 정량적으로 평가하기 위하여 AFM을 이용하여 표면 조도를 관찰하였으며, 결과를 그림 3에 나타내었다. 미처리된 폴리이미드 필름의 조도는 4.04 nm로 나타났으

Fig. 2. Contact angle of the modified polyimide surface in various conditions: (a) untreated, 77.2° , (b) KOH, 28° , (c) KOH + EDA, 63.6° , (d) KOH + KMnO_4 treatments, 47.4° .

Fig. 3. The 3-D AFM images of the modified polyimide surface in various conditions: (a) untreated, RMS = 4.04 nm, (b) KOH, 15.00 nm, (c) KOH + EDA, 22.84 nm, (d) KOH + KMnO_4 treatments, 9.98 nm.

며, 알칼리 용액으로 개질된 폴리이미드 표면형상은 처리하지 않은 필름의 표면에 비해 요철이 뚜렷이 증가한 것을 확인할 수 있었다. 특히 KOH 단독으로 표면개질된 폴리이미드의 경우, 표면조도가 15 nm로 다른 표면개질 처리에 비해 보다 미세한 요철이 형성된 것을 확인할 수 있었으며, KOH와 EDA 혼합용액으로 표면이 개질된 폴리이미드의 경우, 조도가 22.84 nm로 가장 큰 값을 나타내었다.

3.3 습식 표면개질에 따른 폴리이미드 표면의 결합구조 변화

개질된 폴리이미드 표면의 원소 및 화학결합상태를 확인하기 위하여 XPS 분석을 진행하였으며, 검출된 각 성분들의 상대 조성 비율을 표 1에 나타내었다. 이론적으로 미처리된 PMDA-ODA 폴리이미드의 C, O, N 비율은 각각 75.9%, 17.2%, 6.9%로 실험적으로 얻어진 수치와 비슷한 값을 나타내었다¹³⁾. KOH와 KOH와 KMnO_4 혼합용액에 의해 표면이 개질된 폴리이미드에서는 미처리된 폴리이미

Table 1. XPS atomic concentration of the modified polyimide surface in various conditions

	Atomic concentration (at. %)			
	C	O	N	K
Untreated	77.44	16.5	6.07	-
KOH treatment	65.05	21.94	6.10	6.91
KOH + EDA treatment	76.57	16.83	6.6	-
KOH + KMnO_4 treatment	72.38	20.17	6.65	0.8

Fig. 4. C 1s core-level XPS spectra of the modified polyimide surface in various conditions: (a) untreated, (b) KOH, (c) KOH + EDA, (d) KOH + KMnO_4 treatments.

Table 2. C 1s peak bonding ratios of the modified polyimide surface in various conditions

	Bonding ratio (at.%)						
Binding energy (eV)	284.7	285.6	286.3	288.6	287.2	288.1	289.1
Binding states	C-C	C-N	C-O	C=O	N-C=O (amide)	O=C-NH (amine)	O=C-OH (carboxyl)
Untreated	48.60	24.6	14.88	11.92	-	-	-
KOH treatment	41.00	33.90	9.55	2.10	2.68	8.87	1.91
KOH + EDA treatment	45.79	30.29	10.86	2.07	0.63	4.47	5.90
KOH + KMnO_4 treatment	45.42	29.37	10.91	2.93	1.01	5.07	5.29

드와 비교하여 탄소의 양이 감소하고 산소의 양이 증가하는 결과를 나타내었다. 이는 알칼리에 의해 개질된 폴리이미드 표면에서 가수분해에 의해 이미드링이 불안정한 상태로 개환이 되고, 이 불안정한 이미드링이 카르복실기와 아미드기로 결합을 형성하기 때문에 산소의 양이 증가하고 상대적으로 탄소의 양이 감소한 것으로 판단된다. 그러나 KOH와 EDA 혼합용액으로 개질된 경우, 미처리된 폴리이미드의 표면과 비교하여 각 성분들의 상대 조성 비율에 뚜렷한 변화를 보이지 않았으며, K 피크 또한 검출되지 않아 추가 연구가 필요할 것으로 판단된다.

개질된 폴리이미드 표면의 화학결합 구조를 정확

하게 분석하기 위해 C 1s 피크를 분리한 결과를 그림 4와 표 2에 나타내었다. PMDA-ODA 폴리이미드는 C 1s 피크 분리 시, ODA의 벤젠고리 탄소로 인한 C-C 결합(284.7 eV)과 PMDA의 벤젠고리 탄소 및 C-N 결합(285.6 eV), ODA의 aromatic 탄소와 산소의 결합으로 이루어진 C-O 결합(286.3 eV), PMDA 카르보닐기 C=O 결합(288.6 eV)으로 이루어져 있다¹³⁾. 개질된 폴리이미드에서는 미처리된 폴리이미드와 비교하여 ODA의 C-C 결합과 C-O 결합은 감소하였으며, PMDA의 벤젠고리 탄소 및 C-N 결합이 증가한 것을 확인할 수 있었다. 특히 PMDA 카르보닐기 C=O 결합은 표면 개질 후 현저하게 감소한 것으로 나타났으며, 이는 표면개질

공정 중 폴리이미드 표면에 N-C=O 결합(287.5 eV, 아미드기), O=C-NH 결합(288.1 eV, 아민기), O=C-OH 결합(289.1 eV, 카르복실기)^{14,15)}에 해당하는 새로운 화학결합이 형성되었기 때문으로 판단된다. 이러한 결합구조의 변화가 폴리이미드 표면의 친수성을 증가시켜 접촉각을 감소시킨 것으로 생각된다.

3.4 표면개질된 폴리이미드 필름 위에 증착된 구리 도금피막의 특성

그림 5는 표면개질된 폴리이미드 필름 위에 무전해 방식으로 구리를 도금한 후 단면을 관찰한 결과이다. 또한, 도금된 구리 표면의 비저항 및 조도를 측정된 결과를 표 3에 정리하여 나타내었다. KOH에 의해 개질된 폴리이미드 표면에 도금된 구리피막의 경우 폴리이미드 필름과 무전해 구리 도금피막 사이의 계면에 불연속적인 구리 도금피막의 형성이 관찰되었으며, 이후 치밀한 구리막이 형성된 것을 확인하였다. 그러나 KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO₄ 혼합용액을 사용하여 폴리이미드 표면을 개질한 경우에는 구리피막과 폴리이미드 사이에 불연속적인 층이 관찰되지 않았으며, 치밀한 구리막이 폴리이미드 표면에 형성된 것을 확인하였다. 무전해 구리막의 비저항을 측정한 결과 KOH에 의해 개질된 폴리이미드 표면에 증착된 구리막의 경우 27.99 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ 로 가장 높은 값을 나타내었으며, KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO₄ 혼합용액을 사용하여 개질한 경우에는 각각 3.45, 4.57 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ 의 낮은 비저항 값을 나타내었다. 표면개질 공정 시 형성된 작용기의 종류 및 양에 따라 무전해 도금막의 초기 형상 및 특성이 결정되는 것으로 생각되며, 이러한

결과가 비저항의 차이를 가져온 것으로 판단된다. 또한 AFM 측정결과 KOH에 의해 개질된 폴리이미드 표면에 증착된 구리막의 경우, 74.32 nm로 가장 높은 조도를 나타내었으며 KOH와 EDA 혼합용액으로 개질된 경우 표면개질 후 가장 높은 조도를 나타낸 것과는 다르게 구리도금 후 KOH로 개질된 경우보다 낮은 조도를 나타내었다. 또한, KOH와 KMnO₄ 혼합용액으로 개질된 경우 23.61 nm로 개질 전과 동일하게 가장 낮은 조도를 나타내었다.

3.5 구리 도금피막과 폴리이미드 필름 사이의 접합력

표면개질처리를 진행하지 않은 경우 무전해 구리 도금공정 후 수세공정에서 도금피막이 박리되어 접합력 평가가 용이하지 않았으며, 이에 습식 표면개질된 경우에 대해서만 폴리이미드와 구리 도금피막 사이의 접합력을 180° Peel 테스트 방법으로 측정하여 그림 6에 나타내었다. KOH에 의해 개질된 폴리이미드의 경우, 구리 도금피막과 691 gf/cm의 접합력을 나타내었으며, KOH와 KMnO₄ 혼합용액에 의해 개질된 폴리이미드의 경우는 515 gf/cm, KOH와 EDA 혼합용액에 의해 개질된 폴리이미드는 874 gf/cm로 가장 큰 접합력을 나타내었다.

일반적으로 폴리이미드 표면은 알카리 에칭에 의해 수십 nm 정도의 편흔이 생성되며 표면 조도가 증가함에 따라 표면 활성화 정도가 증가하고 anchoring 효과에 의하여 금속 층과의 계면 결합력이 증가한다¹⁶⁾. 따라서 표면 조도가 높은 KOH 및 KOH와 EDA 혼합용액으로 개질된 폴리이미드의 경우 KOH와 KMnO₄ 혼합용액으로 개질된 폴리이미드보다 높은 접합력을 나타낸 것으로 판단된다.

Fig. 5. Cross section of Electroless-plated Cu layers in various conditions : (a) KOH, (b) KOH + EDA, (c) KOH + KMnO₄ treatments.

Table 3. Specific resistance and surface roughness after electroless-plated Cu process in various surface modifications

		KOH treatment	KOH + EDA treatment	KOH + KMnO ₄ treatment
Specific Resistance ($\mu\Omega \cdot \text{cm}$)		27.99	3.45	4.57
RMS (nm)	After surface modification	15.00	22.84	9.98
	After electroless Cu plating	74.32	37.16	23.61

Fig. 6. Peel strength between modified polyimide films and electroless-plated Cu layers.

표 2를 보면 KOH에 의해 개질된 경우 아민기가 우세하게 형성되었으며, KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO₄ 혼합용액으로 개질된 표면에서는 아민기와 카르복실기가 우세하게 형성되었다. 기존의 연구결과¹⁷⁾를 보면 KOH 용액으로 개질된 폴리이미드 표면은 친수성 결합인 카르복실기와 아미드기가 형성되어 금속박막과 폴리이미드 사이의 계면 접합력 향상에 기여하는 것으로 알려져 있다. 따라서 KOH 용액으로 개질된 폴리이미드의 경우 접합력에 기여하는 작용기가 많이 형성되어 가장 높은 접합력을 나타낼 것으로 기대되었으나, KOH와 EDA 혼합용액으로 개질된 폴리이미드가 가장 높은 접합력을 나타내었다. 따라서 폴리이미드 표면에 형성된 아민기 보다 카르복실기가 접합력에 미치는 영향이 큰 것으로 판단되며, 이러한 결과는 카르복실기가 O=C-O-Cu 결합을 형성시켜 구리 도금피막과 폴리이미드 사이의 계면접합력을 향상시킨다는 기존의 연구결과¹⁷⁾와 일치한다. 그러나 KOH와 KMnO₄ 혼합용액으로 개질된 폴리이미드에서는 KOH로 단독 처리된 폴리이미드 보다 카르복실기의 양이 높게 나타났으나 낮은 접합력을 나타내었으므로, 이러한 결과로부터 폴리이미드 표면에 형성된 작용기의 양과 종류 뿐만 아니라 표면 조도 및 접촉각이 복합적으로 접합력에 영향을 미치는 것으로 판단된다.

4. 결 론

습식 표면개질 처리가 폴리이미드와 무전해 구리 도금피막의 계면접합력에 미치는 영향을 조사하기 위하여, 폴리이미드 표면을 KOH, KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO₄ 혼합용액으로 처리하고, 이에 따른 폴리이미드 표면의 화학결합 구조 및 접합력을 측정하였다. 표면개질된 폴리이미드는 처리하지 않은 필름에 비해 조도가 증가하였으며, KOH와 EDA 혼

합용액으로 개질한 경우 표면조도는 22.8 nm로 가장 높은 값을 나타내었다. 표면개질에 의하여 아미드기, 아민기 및 카르복실기가 형성되었으며 이러한 표면의 화학결합 구조의 변화가 표면의 친수성을 증가시켜 접촉각을 감소시킨 것으로 판단된다. 또한 KOH 단독처리, KOH와 EDA 및 KOH와 KMnO₄ 혼합용액으로 개질된 경우 각각 691, 874, 515 gf/cm의 접합력을 나타내었다. KOH와 EDA 혼합용액으로 개질된 경우 가장 우수한 접합력과 비저항을 나타내었으며, 폴리이미드 표면처리에 적합한 것으로 판단된다. 따라서 표면개질 처리는 무전해 구리 도금피막의 접합력에 큰 영향을 미치며, 폴리이미드 표면에 형성된 작용기의 양과 종류 뿐만 아니라 표면 조도 및 접촉각이 접합력과 복합적인 상관관계를 가지고 있는 것으로 판단된다.

후 기

본 연구는 지식경제부 산업융합원천기술개발사업(10039210)의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. S. J. Park, K. S. Cho, S. H. Kim, Hwahak Konghak, 40 (2002) 613.
2. J. W. Choi, T. S. Oh, Y. H. Kim, J. Kor. Inst. Met. & Mater., 35 (1997) 542.
3. K. W. Lee, S. P. Kowalczyk, American Chemical Society, Washington D. C., 13 (1990) 79.
4. B. S. Min, K. H. Seo, W. S. Chung, I. S. Lee, S. H. Park, J. Kor. Inst. Met. & Mater., 40 (2002) 886.
5. A. Ebe, E. Takahashi, Y. Iwamoto, N. Kuratani, S. Nishiyama, O. Imai K. Ogata, Y. Setsuhara, S. Miyake, Thin Solid Films, 281 (1996) 356.
6. S. H. Kim, J. K. Park, K. S. Oh, J. Kor. Fiber Soc., 31 (1994) 57.
7. H. J. Kim, Y. J. Park, J. H. Choi, H. S. Han, Y. T. Hong, J. Industr. Engin. Chemi., 15 (2009) 23.
8. H. K. Yun, K. Cho, J. K. Kim, C. E. Park, S. M. Sim, S. Y. Oh, M. Park, Polymer, 38(4) (1997) 827.
9. S. B. Koo, H. K. Lee, J. Kor. Inst. Sur. Eng., 39 (2006) 166.
10. J. Thanuja, M. Srinivasan, J. Polym. Sci. Polym. Chem., 26 (1988) 7.
11. N. Nihizaki, J. Chem. Soc. Jpn., Ind. Chem. Sec., 69 (1996) 1393.
12. X. D. Huang, S. M. Bhangale, P. M. Moran, N. L. Yakovlev, J. Pan, Polym. Int., 52 (2003) 1064.
13. S. H. Kim, S. W. Na, N. E. Lee, Y. W. Nam, Y.

- H. Kim, Surf. Coat. Tech., 200 (2005) 2072.
14. G. S. Chang, S. M. Jung, Y. S. Lee, I. S. Choi, C. N. Whang, J. J. Woo, Y. P. Lee, J. Appl. Phys., 81 (1997) 135.
15. W. Yu, T. M. Ko, Eur Polym J., 37 (2001) 1791.
16. S. B. Koo, H. K. Lee, J. Kor. Inst. Surf. Eng., 39 (2006) 166.
17. Z. Wang, A. Furuya, K. Yasuda, H. Ikeda, T. Baba, M. Higihwara, S. Toki, S. Shingubara, H. Kubota, T. Ohmi, J. Adhesion Sci. Technol., 16 (2002) 1027.