

## 관능성 단량체 종류에 따른 4원 용액형 아크릴계 점착제의 합성과 물성에 관한 연구

김남석<sup>†</sup> · 김성훈

신라대학교 공과대학 에너지응용화학과  
(2008년 9월 17일 접수 ; 2008년 12월 15일 채택)

### The Effects of Functional Monomers on the Synthesis and Physical Properties of Solution Type Quaternary Polymer Acrylic Pressure-Sensitive Adhesives

Nam-Seok Kim<sup>†</sup> · Sung-Hoon Kim

*Department of Engineering in Energy and Applied Chemistry, Silla University,  
Busan 617-736, Korea*

*(Received September 17, 2008 ; Accepted December 15, 2008)*

**Abstract** : To prepare a solution type acrylic pressure-sensitive adhesive, quarter polymers were synthesized from butyl acrylate(BA), 2-ethylhexylacrylate(2-EHA) as a base monomer, methyl methacrylate(MMA) as a comonomer, each of methacrylic acid(MAA), acrylic acid(AA) as a functional monomer. Acrylic solution type pressure-sensitive adhesives(PSA's) of isocyanate derivative crosslinking PSA's were prepared by crosslinking of BEMM, BEMA with toluene-2,4-diisocyanate. The structure of adhesive was identified by FT-IR. The viscosity was measured by using Brookfield DV-III and molecular weight was measured by using gel permeation chromatography. The physical properties of polyethylene film coated with BEMMT, BEMAT were measured as a function of the concentration. As the result, BEMMT(0.6, 0.8), BEMAT(0.6) showed peel adhesion of 160~180 g/ 25 mm width and shear adhesion of more than 24 hours, and tackiness of 4/32~6/32 which was relevant to commercial usage.

*Keywords* : functional monomer, pressure-sensitive adhesives, TDI, peel adhesion, shear adhesion

### 1. 서론

점착제에 관한 연구는 1845년 Shecut와 Day[1]가 고무계 점착제를 반창고에 처음 응용

하였고, 1926년에는 Levine[2]이 지금의 점착제와는 약간 다르지만 최초의 전기 테이프를 생산하였다. 그 후 Drew[3]이 고무에 산화아연과 coumarone-indene 수지를 가해 페인트 매스킹 테이프와 투명 필름 테이프 등을 만든 것이 본격적인 연구의 시초가 되었다. 그들은 점착제

<sup>†</sup> 주저자 (E-mail: kim44nam@hanmail.net)

합성의 성공 여부는 점착제가 피착체에 쉽게 붙고 떼어낼 때 피착체에 점착제 잔유물을 남기지 않아야 한다고 서술하였다.

그 이후로는 종이나 직물 대신 포일과 플라스틱 필름을 지지체로 한 점착테이프가 생산되면서 발전을 거듭한 결과 현재는 라벨, 밀봉, 명찰, 도로표시, 앨범 및 벽지 등 광범위한 용도에 사용되고 있다.

점착제의 한 분야로서 흔히 감압점착제로서의 점착제는 산업발전으로 인해 각 분야마다 고기능의 점착테이프를 필요로 하게 되었으며, 그 수요도 증가하고 있다. 점착테이프는 전기 전자 산업, 자동차 산업, 포장용 및 건축용 등에 널리 쓰이고 있으며 전기절연테이프, 마스크테이프, 포장용테이프, 양면테이프, 보호용테이프, 앨범, 벽지 등 다양한 용도로 널리 사용되고 있다. 점착테이프의 종류로는 고무타입[4], 실리콘타입[5-6], hot melt타입[7-9], acryl타입[10-12] 등이 있다.

이들 중 acryl타입은 수용성 유화형, 용액형 그리고 무용제형이 있는데 유화형은 도포 가공시에 안전위생, 무공해, 저렴한 가격 및 가교 불필요성 등 여러 가지 장점이 있으나 합성시의 까다로운 조건과 높은 분자량을 지니기 때문에 용제성이 결여되고 제품의 수명이 짧은 큰 단점을 지니고 있다. 그리고 용액형은 가교제를 사용하는 번거로움과 유기용제를 사용하므로 냄새가 나고 화재 위험이 있는 반면 건조성이 빠르고 점착시에 기재와의 밀착성이 양호하며 점착제 제조방법이 유화형보다 간편하고 제품의 유효기간이 길기 때문에 고기능의 점착테이프는 주로 용액형으로 만들고 있다[11-13].

용액형 점착제는 기능성 단량체를 이용하여 용도에 맞는 물성을 조절할 수 있는 장점이 있고, 내후성, 내유성이 우수하며 분자량이 비교적 적은 중합체이기 때문에 반드시 가교제를 병용처리하여 중합체를 부분가교시킴으로써 내열성을 향상시킬 수 있다. 가교제 종류도 폴리이소시아네이트형, 부록시메틸멜라민형 및 알킬디글리시딜에테르형 등 여러 가지가 있고 모체 수지에 대한 가교제의 영향이 커서 점도, 분자량에 변화를 줌은 물론 점착성의 3물성인 점착성, 응집력, 점착력에도 차이를 나타내어 영구형 내지 재박리형 점착제를 결정짓는데 중요한 역할을 한다[12].

용액형 아크릴계 점착제에 관한 연구로는

Park[10-13]이 n-부틸아크릴레이트, 비닐아세테이트 및 무수 말레이산에 의한 3원 중합체를 합성하고 헥사메틸올멜라민형의 가교제를 사용하여 폴리에스테르 필름에 도포하여 점착제의 물성변화를 시켰고, Heilmann등이 n-아크릴로아미노산과 긴 사슬의 알킬아크릴레이트의 산유도체들을 공중합 시켜 용액형 점착제를 제조하였다[14]. Seul[11-12] 등은 4원 아크릴계 중합체를 합성하고 여기에 2종류의 가교제를 사용하여 점착제를 제조하여 폴리올레핀 필름에 직접 도포하여 점착제의 물성과 최종 생산제품의 안정성과 균일성을 얻는 최적 조건을 구하는 연구를 하였다.

따라서 본 연구는 다양한 용도로 널리 사용되고 있는 용액형 아크릴 점착제를 합성하기 위해 유리전이온도( $T_g$ )가 낮고 점착성을 부여하는 n-부틸 아크릴레이트(BA)와 2-에틸헥실 아크릴레이트(2-EHA),  $T_g$ 가 높고 점착력과 응집력을 부여하는 메틸메타크릴레이트(MMA), 가교화 작용기를 지닌 관능성 단량체인 메타크릴산(MAA)과 아크릴산(AA)을 각각 사용하여 4원 용액형 아크릴계 중합체를 합성하였다. 여기에 가교화 작용기가 다른 단량체로 합성된 중합체를 이소시아네이트형의 가교제를 사용하여 아크릴계 점착제를 합성하여 가교전과 후의 화학구조와 분자량 분포를 비교 검토하였다. 그리고 관능성 단량체 종류(MAA, AA)에 따른 아크릴계 점착제를 폴리에틸렌 필름에 도포하여 가교제의 양에 따른 점착성, 응집력 및 점착력을 측정하여 점착제로서의 사용여부를 고찰하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 시약

4원 아크릴계 용액형 점착제(이하 BEMM, BEMA)의 주원료인 n-butyl acrylate(이하 BA), 2-ethylhexyl acrylate(이하 2-EHA), methyl methacrylate(이하 MMA)는 Junsei Chemical사의 1급시약을 묽은 아황산 나트륨 수용액, 5% 수산화나트륨 수용액, 20% 염화나트륨 수용액의 순서로 세척하고 무수황산나트륨으로 24시간 탈수 시킨 후 감압증류하였다. Methacrylic acid와 acrylic acid는 Junsei Chemical사의 1급 시약을 그대로 사용하였다.

Table 1. Polymerization Conditions and Physical Properties of Acrylic Adhesives

Polymers	Reaction materials (mole)				Reaction Conditions				Vis. (cps)	Con. (%)	Solid content (wt%)
	BA	2-EHA	MMA	MAA	Temp. (°C)	Time (hr)	Monomers /Solvent ratio(v/v)	BPO (mmole/l)			
BEMM-1	0.4	0.4	0.4	0.04	70	8	1	10	1044	63	31
BEMM-2	0.4	0.4	0.4	0.05	75	8	1	10	-	68	34
BEMM-3	0.4	0.4	0.4	0.04	75	8	1	10	1179	71	35
BEMM-4	0.4	0.4	0.4	0.03	75	8	1	10	1111	67	33
BEMM-5	0.4	0.4	0.4	0.02	75	8	1	10	1077	65	32
Polymers	Reaction materials (mole)				Reaction Conditions				Vis. (cps)	Con. (%)	Solid content (wt%)
	BA	2-EHA	MMA	AA	Temp. (°C)	Time (hr)	Monomers /Solvent ratio(v/v)	BPO (mmol/l)			
BEMA-1	0.4	0.4	0.4	0.04	70	8	1	10	914	71	35
BEMA-2	0.4	0.4	0.4	0.05	75	8	1	10	-	77	38
BEMA-3	0.4	0.4	0.4	0.04	75	8	1	10	1019	79	39
BEMA-4	0.4	0.4	0.4	0.03	75	8	1	10	966	75	37
BEMA-5	0.4	0.4	0.4	0.02	75	8	1	10	940	73	36

개시제 benzoyl peroxide(이하 BPO)는 일본 Kanto Chemical사의 1급 시약으로 클로로포름에 상온에서 용해 시킨 후 다량의 메탄올속에 주입시켜 재침전법으로 정제를 하였으며[15], 용제인 ethyl acetate(이하 EAc)는 Sigma Chemical사의 1급시약을 그대로 사용하였다. 가교제는 일본 Polyurethane Kogyo사의 toluene-2,4-diisocyanate(이하 TDI)를 사용하였다.

## 2.2. 4원 공중합체의 합성장치 및 실험방법

교반기, 정량펌프, 온도계, 질소 도입관 및 환류 냉각기가 장치된 pyrex 재질의 1 L 용량인 회분식 반응장치를 사용하였다[11]. 실험방법으로는 먼저 반응기에 일정량의 용제를 주입시킨 후 일정비로 혼합시켜 놓은 단량체와 개시제를 일정하게 유지된 중합온도 75°C에서 일정 교반속도로 4시간 동안 일정유속으로 적하시켰으며 전체 중합시간은 8시간으로 하였다. 반응과정이 발열반응을 동반하므로 일정반응온도를 유지시키기 위해 자동온도조절장치를 사용하였으며 질소기류하에서 중합을 실시하였다. 숙성된

BEMM과 BEMA들을 200 g을 채취하여 톨루엔에 용해시켜 용해된 용액을 4°C이하로 냉각된 메탄올에 교반시키면서 가하여 BEMM과 BEMA를 침전시켰다. 침전된 반응물을 동일한 방법으로 3회 반복하여 미반응물질을 완전히 제거하였으며 질소 기류하의 35°C, 7 mmHg에서 48시간 건조시킨 후 다시 톨루엔을 가하여 보관하였다. 4원 용액형 아크릴계 공중합체의 합성조건을 Table 1에 나타내었다.

## 2.3. BEMM과 BEMA의 가교반응

Table 1의 합성조건으로 4원 중합체를 합성한 후 물성을 측정된 결과 BEMM-3과 BEMA-3이 점도, 고형분 함량, 전화율이 가장 우수하게 나타났으며 가교반응에는 BEMM-3과 BEMA-3을 사용하였다. 교반기, 환류 냉각기 및 온도계를 붙인 200 ml의 4구 플라스크에 BEMM과 BEMA를 100g을 넣고 무색 투명 액상의 가교제인 TDI를 각각 0.2~1.0 g으로 변화시켜 25°C에서 2시간을 반응시켜 가교제의 양에 따른 이소시아네이트 유도 중합체 (BEMMT, BEMAT)를 제조하였고 Table 2에

Table 2. Crosslinking Conditions and Solution Characteristics of BEMAT and BEMMT

Products	Reaction materials		Reaction conditions		Vis. (cps)	M <sub>n</sub> (x 10 <sup>-5</sup> )	M <sub>w</sub> (x 10 <sup>-5</sup> )	
	Quaternary polymer(g)	Crosslinking agent(g)	Temp (°C)	Time (hr)				
EBMMT-1	BEMM-3	100	0.2	25	2	2219	1.00	2.24
EBMMT-2			0.4			2351	1.15	2.51
EBMMT-3			0.6			2453	1.35	2.47
EBMMT-4			0.8			2547	1.45	2.89
EBMMT-5			1.0			2663	1.53	3.10
Products	Reaction materials		Reaction conditions		Vis. (cps)	M <sub>n</sub> (x 10 <sup>-5</sup> )	M <sub>w</sub> (x 10 <sup>-5</sup> )	
	Quaternary polymer(g)	Crosslinking agent(g)	Temp (°C)	Time (hr)				
BEMAT-1	BEMA-3	100	0.2	25	2	1529	0.97	2.25
BEMAT-2			0.4			1651	1.08	2.47
BEMAT-3			0.6			1715	1.09	2.60
BEMAT-4			0.8			2167	1.19	2.68
BEMAT-5			1.0			2355	1.35	2.86

그 반응조건을 나타내었다.

#### 2.4. 분석

##### 2.4.1. 4원 중합체와 유도 가교체 구조, 분자량분포, 점도

합성한 4원 공중합체(BEMM-3, BEMA-3)와 이소시아네이트 유도가교체(BEMMT, BEMAT)의 구조를 분석하기 위해 THF에 용해시킨 시료를 유리판에 도포하여 필름을 만든 후 Nicolet사의 model 710 퓨리에 변환 적외선 분광기(FT-IR spectrophotometer)를 사용하였다. 그리고 미국 Waters 150C 겔투과크로마토그래피(GPC)를 이용하여 유도가교체의 수평균 분자량(M<sub>n</sub>)과 중량평균분자량(M<sub>w</sub>)을 측정하였다. 측정조건은 시료농도 0.5%(THF용액), 시스템 온도 40°C, 유속 1.0 ml/min이었으며 column은 투과율 500, 10<sup>3</sup>, 10<sup>4</sup>, 및 10<sup>5</sup> Å순서로 된 μ-styragel column을 사용하였으며, 측정시의 보정은 폴리스티렌 표준품(Waters Associates)를 이용하였다. 또한 점도는 25°C 항온수조에 4원 중합체와 유도가교체들을 spindle #LV3을 이용하여 미국 Brookfield LVDV-III로 측정하였다. 4원 중합체의 고형분 함량은 35°C, 8 mmHg 상태로 유지된 진공건조기로 48 시간 동안 건조하여 유기용매를 완전히 제거한 후 고형분의 무게를 계산하였다.

##### 2.4.2. 접착제의 성능시험

###### 2.4.2-1. BEMMT와 BEMAT의 도포시험

폴리에틸렌(한화중합화학사제)필름을 지지체로 사용하였고, 이 필름에 각기 다른 양의 TDI를 첨가하여 만든 BEMMT와 BEMAT를 직접 30 μm의 두께로 도포하여 100°C에서 3분 동안 건조시켜 표준상태에서 24시간동안 방치한 것을 시료로 사용하였다. 표준상태는 실내온도 25±1°C, 상대습도 65±2%로 하였으며 균일한 도포를 위해 Doctor blade법(일본 Yasuda Seiki Seisakusho사제)을 사용[16]하였으며, 두께는 dial thickness gauge(일본 Mitutoyo사제)를 사용하여 측정하였다.

###### 2.4.2-2. 접착력시험

BEMMT와 BEMAT를 두께 2.0 mm, 폭 50 mm, 길이 125 mm의 냉간 압연 스테인레스 강판(KS D3698)에 부착시키고 automatic pressing roll testing machine의 2 kg 고무 롤러(KS M6518)로 5 mm/sec 속도로 8회 왕복 압착시켰다. 30분 후 autograph(일본 Shimadzu사, P-100형)를 사용하여 표준상태에서 180°의 방향으로 300 mm/min의 속도로 박리 강도[16]를 측정하였다.

### 2.4.2-3. 응집력 시험

유도가교체를 점착력 시험에서와 같은 크기의 냉간 압연 스테인레스(KS D3698)에 접촉면적 25×25 mm 되게 부착시키고 2 kg의 고무 로울러 8회 왕복 압착시킨 후 표준 상태에서 1 시간 방치시키고 난 다음 각도를 0°로 유지하여 하단에 1 kg의 하중을 걸어 70°C에서 자연 낙하하는 시간을 측정하였다[11]. 이 때 사용한 측정기는 일본 Yasuda Seiki Seisakusho의 YSS #145-LCT였다.

### 2.4.2-4 점착성 시험

Dow법인 경사식 ball tack 측정법[16]으로, 일본 Yasuda Seiki Seisakusho의 YSS#274 측정기를 사용하였다. 경사판은 플로우트 판유리(KS L2)에 두께 5 mm, 볼의 주행길이는 100 mm 및 각도 30°로 표준상태에서 측정하였으며 볼의 재질은 고탄소 크롬 베어링 강재(KS D3525)이었다.

### 2.4.2-5 경시변화시험

시간의 경과에 따라 변화하는 테이프 및 시트의 겉모양이나 물리, 화학적 경시변화를 관찰하였다. 시험방법[11]으로는 일본 Toyoseki사제 항온 항습기를 사용하였고 시험조건은 온도 65±5°C, 상대습도 70±5%에 방치시킨 후 일정한 시간간격으로 시험하여 최고 90일까지 점착력 변화를 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 4원 용액형 아크릴계 중합체 합성 (BEMM, BEMA)

4원 용액형 아크릴계 중합체 제조에 있어 중요한 것은 사용되는 여러 가지 단량체의 조성 과 그 단량체의 조성을 변화시켜 가장 적절한 물성을 가진 점착제를 제조하는데 있다. 점착제 제조에 사용되는 주요성분으로 사용되는 단량체로는 유리전이온도( $T_g$ )가 낮고 유연한 성질이 있는 것과 여기에서  $T_g$ 가 높고 딱딱한 성질을 가진 단량체를 소량 첨가하여 중합하여 점착성과 응집성의 균형을 이룰 수 있는 종류여야 한다[17]. 본 연구에서는 점착성을 부여할 목적으로 BA( $T_g$  -55°C), 2-EHA( $T_g$  -70°C)를 사용하였고, 점착력과 응집력 및 반응성의 필요

성에 의해 MAA( $T_g$  130°C), AA( $T_g$  106°C)를 사용하였으며 양쪽의 물성의 균형을 위해 MMA( $T_g$  105°C)를 사용하였다. 그리고 전보 [18]에서의 결과들을 고려하여 사용되는 단량체 종류와 농도, 개시제의 종류와 농도 그리고 반응온도를 결정하여 실험을 행하였다. Table 1에 실험조건과 함께 점도와 전화율 그리고 고형분 함량을 구하여 함께 나타내었다

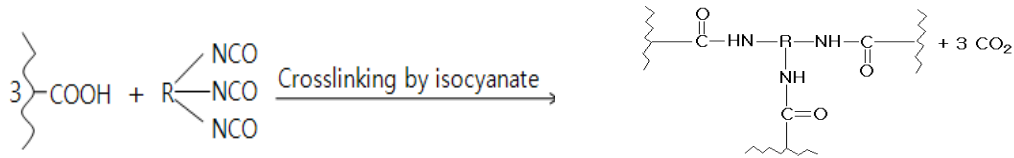
Table 1에서 먼저 관능성 단량체의 농도를 결정하기 위해 MAA의 농도 변화를 주었을 때 BEMM-3이 전화율, 점도 그리고 고형분 값이 가장 크게 나타나고 있으며 BEMM-2 경우에는 전화율과 고형분 함량은 BEMM-3과 유사하나 합성 도중 급격한 점도의 증가로 인해 교반이 불가능해졌다. 이러한 현상은 MAA가 가교화 작용기를 가진 높은 반응성의 단량체이고 MAA의 메틸기가 분자 내에서 상당한 입체장애를 가지므로 내부의 가소화를 억제시켜 점도가 증가하는 것이라 여겨진다.

그리고 반응온도 변화를 살펴보면 BEMM-1보다 BEMM-3이 전화율, 점도 그리고 고형분 값이 크게 나타나 BEMM-3에서의 실험한 반응 온도가 적당함을 알 수 있었다. 또 다른 관능성 단량체인 AA를 이용하였을 때도 MAA 농도와 온도 결정에 있어 같은 결과를 얻을 수 있었다.

그리고 점착제 제조에 있어 점도[19]는 반응 조건 결정과 점착 물성에 중요한 영향을 미치는 변수로 작용되고 있다. 따라서 관능성 단량체의 농도와 반응온도를 고려해 본 결과 BEMM-3과 BEMA-3을 유도 가교체의 원액으로 선정하였다.

### 3.2. BEMM과 BEMA의 가교반응

4원 용액형 아크릴계 중합체 중 BEMM-3과 BEMA-3에 가교제인 TDI의 양을 변화시켜 BEMMT, BEMAT를 제조하였으며 그 가교반응 조건은 Table 2에 가교반응 메카니즘은 Scheme 1에 나타내었다. Scheme 1에서와 같이 BEMA가 TDI에 의해 가교반응을 일으키고 반응 도중에 탈탄산되어 CO<sub>2</sub>가 제거됨과 동시에 아미드 결합에 의해 가교화가 진행되었음을 확인할 수가 있었다. 또한 가교 전과 후인 BEMA와 BEMAT의 합성과 가교 여부를 확인하기 위하여 적외선 분광 스펙트럼을 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에서 4원 용액형 아크릴 중



Scheme 1. Crosslinking mechanism of BEMAP.

합체의 구조를 확인하였으며 또한 파장이  $1540\text{ cm}^{-1}$ 에 제2급 아민의 C-NH 굽힘진동과  $1650\text{ cm}^{-1}$ 에 제2급 아미드의 C=O 신축진동이 새로이 나타남을 미루어 이소시아네이트 가교에 의한 반응이 진행되었음을 확인할 수가 있었다.

Table 2에 가교반응의 조건과 가교시킨 후의 점도와 분자량 분포를 나타내었다. 표에서 점도 값과 평균분자량은 가교전에 비해 큰 값을 나타내었는데 이것은 가교제 TDI로 부분 가교화되었음을 나타내고 있는 것이다. 그리고 BEMMT가 BEMAT보다 점도와 평균분자량이 높는데 이것은 MAA가 AA보다 TDI에 대해 반응성이 좋음을 알 수 있다.

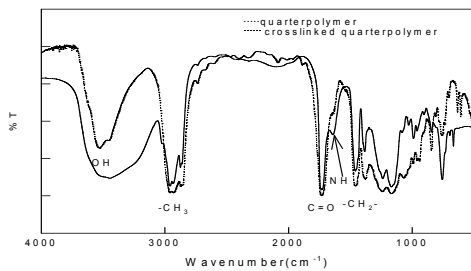


Fig. 1. FT-IR spectrum of quarterpolymer (BEMA-3) and crosslinked quarterpolymer (BEMAT-3).

### 3.3. 접착제의 성능시험

Park[10], Settineri[20], Dobroski[21], Satas[22], Brooks[23] 등은 아크릴계 공중합체의 접착제를 제조시 분자량이 증가할수록 접착력과 접착성은 감소되고 응집력은 증가된다는 이론을 밝혔다. 따라서 본 연구에서는 가교제의 사용농도에 따른 접착력, 응집력, 접착성시험을 통해 합성된 유도가교체가 접착제로서 사용할 수 있는가를 알아보았다.

먼저 가교제 농도 변화에 BEMM-3과

BEMA-3의 접착력 변화를 Fig. 2에 나타내었다. 가교제의 농도가 증가할수록 접착력은 감소하였다. 즉 접착력은 분자량의 증가에 반비례함을 알 수 있었다. 그리고 BEMA-3이 BEMM-3보다 접착력이 높은 것은  $T_g$  측정결과 BEMA-3의  $T_g$ 가 BEMM-3의  $T_g$ 보다 낮기 때문이다. 여기서 관능성 단량체인 MAA와 AA의 경우 자기가교가 발생할 수 있고, 단량체의 조성 차이에 의한  $T_g$ 의 변화도 접착력에 영향을 미칠 수 있으므로 이에 대한 계속적인 연구가 필요하다고 생각된다.

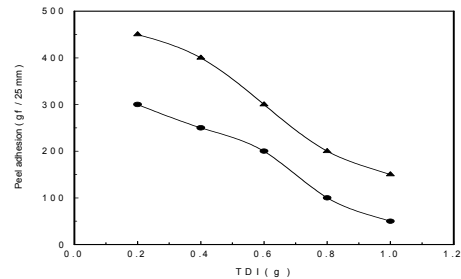
Fig. 2. Peel adhesion of BEMM and BEMA with the concentration of crosslinking agent. [  $\blacktriangle$  : BEMA-3,  $\bullet$  : BEMM-3 ]

Fig. 3는 가교제의 농도에 따른 BEMM-3과 BEMA-3의 응집력 변화를 나타낸 것으로 Fig. 2의 접착력의 결과와 반대로 응집력은 가교제의 농도가 증가함에 따라 증가함을 알 수 있었다. 즉 분자량이 증가에 비례함을 알 수 있었다. 다음은 가교제 농도에 따른 BEMM-3과 BEMA-3의 접착성 변화를 Fig. 4에 나타낸 것인데, 그림에서 나타낸 응집력 값과는 반대로 접착성은 분자량이 커질수록 감소되었으나 TDI의 양이 0.4 g일 때 접착성이 현저히 감소하는

현상을 보였다. 이것은 가교제의 양이 증가하면 점착제 내부응집력이 증가함으로서 순간적인 부착성인 점착성이 저하되는 것으로 생각된다. 접착력, 응집력, 점착성 변화의 결과로부터 분자량이 증가 될수록 응집력이 증가되고 반대로 접착력과 점착성은 감소하는데 이것은 앞서 밝힌 여러 연구자들의 이론과 잘 일치하고 있다.

다음은 가교제인 TDI의 양 변화에 대한 시간 경과에 따른 유도가교제의 접착력 변화를 Fig. 5에 나타내었다. BEMM(0.6, 0.8), BEMA(0.6)의 경우 1000시간 경과 후에도 접착력이 범용성이 우수한 점착테이프의 접착력 범위 150~180 gf / 25 mm에 근접한 접착력을 나타내고 있다.

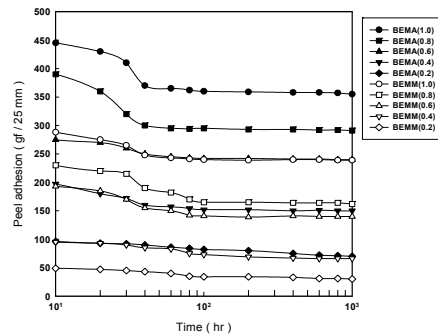


Fig. 5. Correlation of peel adhesion to aging.

#### 4. 결론

4원 용액형 아크릴계 중합체(BEMM-3, BEMA-3)을 합성한 후 TDI을 사용하여 가교제의 양에 따른 이소시아네이트 가교 점착제(BEMMT, BEMAT)를 합성하여 점착제의 접착력, 응집력, 점착성과 내후성 시험을 통해 실제 산업에 적용할 수 있는지의 여부를 살펴보았다. 먼저 BEMM, BEMA 합성에서는 점도는 MAA를 사용 하였을 때 높게 나타났으며 전환율과 고형분 함량은 AA를 사용 하였을 때 높게 나타남을 알 수 있었으며 가교제의 양이 증가할수록 점착제 내부응집력이 증가하고 점착성은 저하됨을 알 수 있었다. 유도가교제 중 BEMMT(0.6, 0.8), BEMAT(0.6)는 각각 접착력이 200 gf / 25 mm, 110 gf / 25 mm, 300 gf / 25 mm을 가지며 응집력은 2210 min, 3540 min, 1473 min, 점착성은 4/32~6/32 그리고 점착테이프로서 사용유무를 확인하는 1000시간 경과 후 접착력이 160 gf / 25 mm, 180 gf / 25 mm, 160 gf / 25 mm을 유지하여 재박리형 점착제로서 사용가능하였다.

#### 참고문헌

1. W. H. Shecut and H. H. Day, Improvement in Adhesive Plasters, U.S. Patent 3,965 (1845).
2. I. W. Levins, Electric insulating tape, U.S. Patent 1,573,978 (1926).
3. R. G. Drew, Adhesive sheeting. U.S.

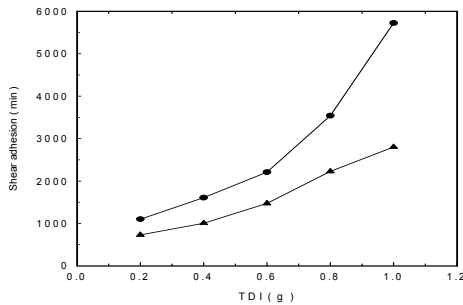


Fig. 3. Shear adhesion of BEMM and BEMA with the concentration of crosslinking agent. [ -▲- : BEMA-3, -●- : BEMM-3 ]

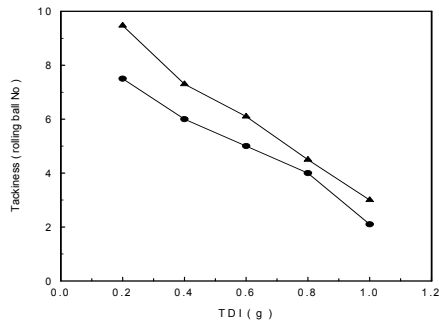


Fig. 4. Tackiness of BEMM-3 and BEMA-3 with the concentration of crosslinking agent. [ -▲- : BEMA-3, -●- : BEMM-3 ]

- Patent 2,177,627 (1939).
4. F. T. Sanderson, Acrylic Hot Melt Pressure Sensitive Adhesives, *Adhesives Age*, **26(12)**, 26 (1983).
  5. S. Huie, P. F. Schmit, and J. S. Warren, Testing adhesive and liner for transthermal drug delivery, *Adhesives Age*, **28(8)**, 30 (1985).
  6. B. Copley, "The Thermal, Dynamic, Mechanical Seminar and Morphological Properties of Silicone Adhesives", M. S. Thesis, Univ. of Minnesota, Minneapolis (1984).
  7. Y. S. Chun, Y. K. Hong, and K. H. Chung, Functional Improvement of Hot Melt Adhesive Using Polyamide Type Resin-(I) Physical Properties of Adhesives, *J. Korean Ind. Eng. Chem.* **7(1)**, 194 (1996).
  8. J. Yoon, M. J. Shim, and S. W. Kim, Compatibility and Properties of SIS Pressure Sensitive Adhesives, *J. Kor. Ind. Eng. Chem.*, **5(5)**, 851 (1994).
  9. R. E. Duncan and J. E. Bergerhouse, EVA and VAE Copolymers for Hot Melt PSA's, *Adhesives Age*, **23(3)**, 37 (1980).
  10. H. S. Park, A Study on Preparation and Adhesives Characteristics of the Acrylic Pressure Sensitive Adhesives(II), *polymer(Korea)*, **9(4)**, 277 (1985).
  11. Y. O. Seo and S. D. Seul, Studied on the Synthesis and Characteristic of Removal Type Pressure-Sensitive Acrylic Adhesives, *J. Korean Ind. Eng. Chem.*, **11(3)**, 335 (2000).
  12. H. S. Park, Synthesis and Physical Properties of Solution Type Acrylic Pressure-Sensitive Adhesives, *J. Korea Fiber Sci.*, **35(1)**, 44 (1998).
  13. J. S. Bae, E. K. Park, H. S. Park, and M. S. Pyoun, A Studies on Synthesis of Acrylic Pressure-Sensitive Adhesives and Its Adhesives Characteristics: 2. Solution Type by Isocyanate Crosslinking, *J. Korea Polymer*, **17(2)**, 203 (1993).
  14. S. M. Heilmann and H. K. Smith, Acrylic-Functional Aminocarboxylic Acids and Derivatives as Components of Pressure-Sensitive Adhesives, *J. Appl. Poly. Sci.*, **24**, 1551 (1979).
  15. R. D. Mair and A. J. Graupner, Determination of organic peroxides by iodine liberation procedures, *Anal. Chem.*, **36**, 194 (1964).
  16. Testing Methods of pressure sensitive adhesive tapes and sheets. KS A 1107 (1992).
  17. L. E. Winslow, R. E. Bennett, and T. S. Overstreet, Removable pressure-sensitive adhesive tape, U.S. Patent, 4,645,711 (1987).
  18. N. S. Kim and K. H. Park, Preparation and Characteristics of Acrylic Pressure-Sensitive Adhesives, *J. Korea Oil Chem. Soc.*, **18(4)**, 316 (2001).
  19. J. W. Hagan, C. B. Mallon, and M. R. Rifi, Recent Developments in Acrylic Polymers for Latex PSA's, *Adhesive Age*, **22**, 29 (1979).
  20. R. A. Settineri, and J. T. O'brien, Release coated adhesive tape, U.S. Patent 3,928,690 (1975).
  21. W. W. Dobroski, Permanent attachment pressure sensitive adhesive tape U.S. Patent 3,285,771 (1966).
  22. D. Satas, Tailoring pressure-sensitive adhesive polymers, *Adhesive Age*, **15(10)**, 19 (1972).
  23. T. W. Brooks, R. M. Kell, L. G. Boss, and D.E. Nordhaus, "Analysis of Factors Important in Emulsion Acrylic Pressure Sensitive Adhesive Design, in Proc. TAPPI Polymer, Laminations and Coatings Conference", p. 496~477, September 24-26, Boston(1984).