

삼관능 모노머의 종류 및 함량에 따른 자외선 경화형 감압 점착 필름의 특성

원종우¹ · 김주열¹ · 장기덕² · 박명철³ · 천제환⁴ · 권오형^{5†} · 황진상^{1†}

¹비엔티엠, ²주연우, ³씨엔에이텍, ⁴한국신발피혁연구원, ⁵금오공과대학교
(2019년 03월 12일 접수, 2019년 03월 19일 수정, 2019년 03월 19일 채택)

Effects of Tri-functional Monomers on the Properties of UV-curable Pressure Sensitive Adhesives (PSAs)

Jong-Woo Won¹, Ju-Yeol Kim¹, Ki-Deog Jang², Myung-Chul Park³, Jae Hwan Chun⁴,
Oh Hyeong Kwon^{5†}, and Jin-Sang Hwang^{1†}

¹BNTM Corporation, 176-8, Songsin-ro, Gasan-myeon, Chilgok-gun, Gyeongbuk, 39850, KOREA

²R&D Center, YONWOO Corporation, 15B-18L, Banwol Industrial Complex 103,
Mokne-ro, Danwon-gu, Ansan-si, Kyunggi-do, KOREA

³C&A Tech, Ltd., 405-126 Wonheung Building, 30, Pildong-ro Igil, Choong-gu, Seoul, 04620, KOREA

⁴Korea Institute of Footwear and Leather Technology, 152 Danggamse-ro, Busanjin-gu,
Busan 614-100, KOREA

⁵Department of Polymer Science and Engineering, Kumoh National Institute of Technology, Gumi,
Gyeongbuk 39177, KOREA

(Received March 12, 2019; Revised March 19, 2019; Accepted March 19, 2019)

요약: Polybutadiene diol (PBD)과 isophorone diisocyanate (IPDI)의 반응을 통하여 이관능 우레탄 아크릴레이트 올리고머 (PB-UAO)를 합성하고, 여기에 삼관능 아크릴레이트 모노머 (Tris(2-acryloyloxyethyl) isocyanurate (TAOEIC), 또는 Trimethylolpropane triacrylate (TMPTA) 또는 Pentaerythritol triacrylate (PETA)), 단관능 아크릴레이트 모노머 (Stearyl Acrylate) 그리고 광개시제를 혼합한 후 이형필름 위에 코팅하고 자외선 경화를 통하여 감압 점착 필름을 제조하였다. 삼관능 아크릴레이트 모노머의 구조 및 함량에 따른 감압 점착제의 박리강도, 인장강도, 신율, 열안정성 및 흡습 특성의 변화를 고찰하였다. 삼관능 아크릴레이트 모노머의 함량이 증가할수록, 그리고 분자량이 작을수록 감압 점착 필름의 박리강도, 연신율 및 흡습율은 감소하는 경향을 보였으며, 인장강도 및 열안정성은 증가하는 것을 확인하였다.

Abstract: In this study, polybutadiene based di-functional urethane acrylate oligomer (PB-UAO) were synthesized from polybutadiene diol and isophorone diisocyanate. And then, pressure sensitive adhesive films were prepared by mixing with synthesized oligomer, tri-functional acrylate monomer (Tris(2-acryloyloxyethyl) isocyanurate (TAOEIC) or Trimethylolpropane triacrylate (TMPTA) or Pentaerythritol triacrylate (PETA)), mono-functional acrylate monomer (Stearyl acrylate) and UV initiators. Effects of types and contents of trifunctional acrylate monomers on peel strength, tensile strength, elongation, thermal stability and water absorption property were studied. As the contents of tri-functional acrylate monomer increased, and as the molecular weight of tri-functional acrylate monomer decreased, peel strength, elongation and water absorption showed a tendency to decrease whereas tensile strength and thermal stability showed a tendency to increase.

Keywords: PSA, Tri-functional acrylate, Peel Strength, Tensile Strength, Elongation, Water absorption

† Corresponding author: Oh Hyeong Kwon (ohkwon@kumoh.ac.kr), Jin Sang Hwang (jshwang@kaist.ac.kr)

1. 서론

현대 사회가 정보화 시대로 급격히 발전함에 따라 정보 및 영상 산업에 있어서 여러 가지 다양한 기능을 보유한 고휘도 고해상도의 평판 디스플레이의 중요성이 점점 증대되고 있으며, 모바일 스마트 기기를 중심으로 소형화, 박형화를 위한 유기 점착 필름의 사용이 증가되는 추세에 있다. 이에 따라 생산성, 친환경성 등의 장점을 갖춘 자외선 경화형 점착 필름의 적용 범위가 넓어지고 있다[1,2].

자외선 경화기술은 빠른 경화속도에 따른 에너지 절약 및 생산성 증가, 무용제 공정에 기인한 친환경성, 저비용 공정 등의 장점으로 최근 표면보호를 위한 코팅 공정, 전자기기 및 반도체 부품, 접착제, 3D 프린팅 및 잉크 등 다양한 분야에 적용 범위가 확대되고 있는 추세에 있다[3-8]. 자외선 경화 기술의 핵심 재료인 자외선 경화형 수지 조성물은 일반적으로 반응성 올리고머, 모노머 및 희석제와 광개시제 등으로 구성되며, 특히 반응성 올리고머는 물리적/기계적 특성을 좌우하는 핵심 요소로[9-10], 일반적으로 아크릴레이트 반응기를 가진 우레탄 아크릴레이트, 에폭시 아크릴레이트, 폴리 에스터 아크릴레이트, 폴리에테르 아크릴레이트, 실리 콘 아크릴레이트 등이 주로 사용되고 있으나 이 중에서도 우레탄 아크릴레이트 올리고머는 우레탄의 우수한 내마모성 및 유연성과 아크릴레이트의 내후성과 투명성을 동시에 가지는 재료로서 말단의 (메타)아크릴레이트 반응기의 높은 반응성은 생산 속도 면에서 상당한 이점이 있다[11-17]. 특히, 합성단계에서 폴리에테르 디이소시아네이트의 종류 및 조성 그리고 합성 방법에 따라 다양한 구조와 물성의 제어가 가능하여 접착제, 도료, 방수제, 코팅제, 감압 점착제 등의 여러 분야에 가장 널리 사용되고 있다[18-19].

감압 점착제는 상온에서 작은 압력에 의해 단시간에 피착제 표면에 점착이 가능하며, 일반적인 점착제와는 달리 쉽게 제거할 수 있는 특징이 있으며[20-23], 광학, 디스플레이, 자동차, 항공산업 등에 필름 형태로 다양하게 활용되고 있다[24-26]. 대부분의 감압 점착제는 자외선 광원을 이용한 기능성 모노머들의 경화반응을 이용하여 삼차원 망상 구조의 필름으로 제작되며 경화 정도에 따라 물성을 조절할 수 있어 그에 관련된 소재 뿐 아니라 공정 관련 연구가 진행되고 있다.

따라서, 본 연구에서는 Polybutadiene diol (PBD)과 isophorone diisocyanate (IPDI)의 반응을 통하여 이관능 우레탄 아크릴레이트 올리고머를 합성하고, 여기에 삼관능 아크릴레이트 모노머 및 단관능 아크릴레이트 모노머 (Stearyl Acrylate) 그리고 광개시제를 혼합하여 감압 점착테이프를 제조하였으며, 삼관능 아크릴레이트

모노머의 구조 및 함량에 따른 감압 점착제의 박리강도, 인장강도, 신율, 열 안정성 및 흡습 특성의 변화를 고찰하였다.

2. 실험

2.1. 재료 및 시약

이관능 우레탄 아크릴레이트 올리고머 (PB-UAO)를 합성하기 위해 먼저 수소 첨가 반응을 통해 이중 결합을 제거한 수첨 폴리부타디엔 디올 (HLBH-P2000, Total Cray Valley)과 isophorone diisocyanate (IPDI, Aldrich)을, 그리고 반응 촉매로 dibutyltin dilaurate (DBTDL, Aldrich), 열안정제로 butylated hydroxytoluene (BHT, Aldrich), 반응성 희석제로 isononyl acrylate (INA, TCI)를 적용하여 올리고머 중간체를 합성하였다. 합성된 올리고머 중간체에 아크릴레이트 반응기를 도입하기 위해서는 2-hydroxyethyl acrylate (HEA, Aldrich)를 정제과정 없이 사용하였다 (Table 1) [27, 28].

감압 점착 필름의 제조에는 합성된 PB-UAO 올리고머와 단관능 모노머인 Stearyl Acrylate (TCI), 점착 부여제로 C5계열의 탄화수소 수지인 wingtack 86 (Total Cray Valley) 및 광개시제로 darocur TPO (Ciba Specialty Chemical)을 추가 정제과정 없이 사용하였다. 삼관능 아크릴레이트 모노머로는 tris(2-acryloyloxyethyl)isocyanurate (TAOEIC, TCI), trimethylolpropane triacrylate (TMPTA, Aldrich), 그리고 pentaerythritol triacrylate (PETA, Aldrich)를 추가 정제 없이 사용하였다 (Table 2).

2.2. 폴리부타디엔계 우레탄 아크릴레이트 올리고머 (PB-UAO) 합성

감압 점착 필름의 제조를 위해 폴리부타디엔 주쇄의 우레탄 아크릴레이트 올리고머를 합성하였으며, 합성 절차를 Fig 1. 에 나타내었다. 4구 플라스크에 HLBH-P2000 디올 모노머와 반응성 희석제인 INA, 그리고 촉매 (DBTDL)와 열안정제 (BHT)를 투입한 후 온도를 60 °C 로 승온하면서 1 시간동안 균일하게 혼합하였다. 그 후 반응기 내부의 온도를 85 °C로 승온하고 온도가 안정화된 시점에서 IPDI를 20분동안 천천히 dropping 하면서 우레탄 반응을 진행하였다. 우레탄 반응 중 발열에 의한 온도 변화를 확인하면서 발열이 멈춘 후 추가로 2 시간 동안 반응을 진행하여 말단에 이소시아네이트 반응기가 결합된 우레탄 prepolymer를 합성하였다. 이 후 반응기 온도를 85 °C로 유지하면서 HEA를 첨가하여 합성된 우레탄 prepolymer의 말단에 아크릴레이트 반응기를 도입하였다. 반응 중간에 FT-IR (PerkinElmer, Frontier) 측정을 통해 -NCO기의

Table 1. Materials used in polybutadiene based urethane acrylate oligomer (PB-UAO) synthesis

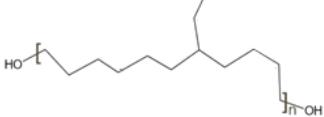
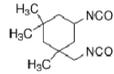
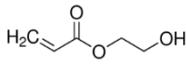
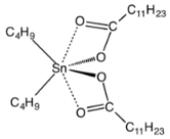
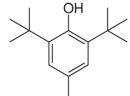
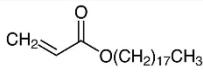
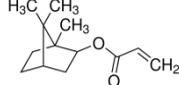
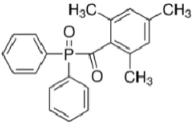
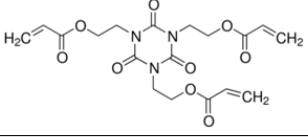
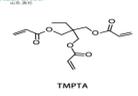
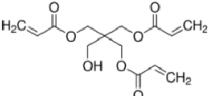
Materials	Chemical Name	Molecular Weight(Mn)	Chemical Structure	Abbreviation /Maker
Diol	Hydrogenated, Hydroxyl terminated polybutadiene	2,000		HLBH-P2000 / Total Cray Valley
Diisocyanate	Isophorone Diisocyanate	222.3		IPDI / Aldrich
End-capping Monomer	2-Hydroxyethyl acrylate	116.1		HEA / Aldrich
Catalyst	Dibutyltin dilaurate	631.6		DBTDL / Aldrich
Thermal Stabilizer	Butylated hydroxytoluene	220.4		BHT / Aldrich
Reactive Diluent	Isononyl acrylate	198.3		INA / TCI

Table 2. Compositions of pressure sensitive adhesive films

Materials	Commercial Name	Mw (g/mol)	Chemical Structure	Contents	Remarks
올리고머	PB-UAO	42,200	-	57.5 wt%	
단관능 아크릴레이트 모노머	Stearyl acrylate	324.55		5.5 wt%	Reference
	Isobornyl Acrylate	208.30		12.5 wt%	
점착 부여제	Wingtack 86	1,300	-	21 wt%	
광개시제	Darocure TPO	348.37		3.5 wt%	
삼관능 모노머	Tris(2-acryloyloxyethyl) isocyanurate(TAOEIC)	423.38		2.5 wt%, 5.0 wt%, 7.5 wt%	
	TMPTA	296.32			
	PETA	298.29			

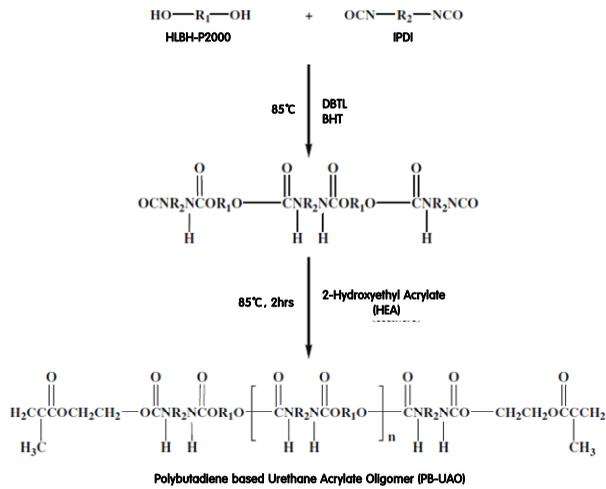


Figure 1. Synthetic process of polybutadiene based urethane acrylate oligomer (PB-UAO).

특성피크가 완전히 사라짐을 확인 후 반응을 종료하여 폴리부타디엔 주쇄로 구성된 PB-UAO 올리고머를 합성하였다. FT-IR 측정은 해상도 0.2 cm⁻¹, scan수 16회로 650~4000 cm⁻¹ 범위에서 측정하였다.

2.3. 감압 점착 필름의 제조 및 특성 분석

합성된 PB-UAO 올리고머, 단관능 아크릴레이트 모노머, 점착 부여제, 광개시제 등을 table 2. 에 나타낸 비율로 균일하게 혼합하여 reference 코팅액을 제조하였다. 제조된 reference 코팅액에 삼관능 아크릴레이트 모노머인 tris(2-acryloyloxyethyl)isocyanurate (TAOEIC), trimethylolpropane triacrylate (TMPTA), 그리고 pentaerythritol triacrylate (PETA)를 각각 2.5, 5, 7.5 wt%를 혼합하여 감압 점착제 코팅액을 제조하였다. 제조된 코팅액은 25 μm 두께의 PET 필름 위에 BAKER type film applicator를 사용하여 100μm 두께로 코팅하고, metal halide 자외선 램프 (M1500/EO)를 사용하여 4000mJ/cm²의 광량으로 경화시켜 점착 필름을 제조하였다. 제조된 감압 점착 필름에 대한 삼관능 모노머의 효과를 확인하기 위해 만능인장시험기(UTM)를 사용하여 SUS 304 기판에 대한 박리강도 (ASTM D3330), 그리고 인장강도 및 신율 (ASTM D638) 등의 기계적 물성을 측정하였다. 박리강도의 측정은 감압 점착 테이프를 규격화된 크기로 자른 후 점착 테이프를 SUS 304 기판에 2kg 고무 롤러로 두 번 압착시켜 23 °C에서 30분 경과 후의 초기 박리강도와 23 °C에서 72시간 숙성시킨 후의 박리강도를 측정하였다. TGA 분석은 TG/DTA (Seiko사, TG/DTA 6200)를 사용하여 질소기류 하에서 20 °C/min의 승온 속도로 분해 거동을 측정하였으며, 100 °C의 끓는 물에 2시간 동안 방치하여 흡

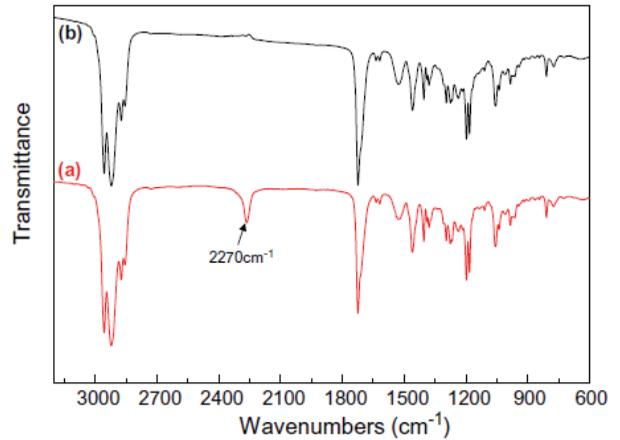


Figure 2. FT-IR spectra of synthesized polybutadiene based urethane acrylate oligomer (PB-UAO).

습율을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 폴리부타디엔계 우레탄 아크릴레이트 올리고머 (PB-UAO)의 합성

합성된 폴리부타디엔계 우레탄 아크릴레이트 올리고머 (PB-UAO)의 합성 여부를 확인하기 위해 FT-IR을 측정하였으며, 그 결과를 Fig 2. 에 나타내었다. Fig 2. (a)는 반응 전의 스펙트럼이고 Fig 2. (b)는 우레탄 반응이 완료된 상태의 올리고머를 측정한 스펙트럼으로 2270cm⁻¹ 부근의 -NCO 피크가 사라짐을 확인 함으로서 우레탄 반응이 진행되었음을 확인하였다. 합성된 PB-UAO 올리고머의 분자량은 42,200 g/mol, 그리고 60°C에서 측정된 점도는 50,770 cps 이었다.

3.2. 기계적 물성 평가

삼관능 아크릴레이트 모노머의 종류 및 함량에 따른 감압 점착 필름의 초기 및 숙성 후 박리강도 측정 결과를 Fig 3. 및 4. 에 나타내었으며, 인장강도 및 신율 측정 결과를 Fig 5. 및 6. 에 나타내었다.

삼관능 아크릴레이트 모노머가 적용된 감압 점착 필름은 삼관능 아크릴레이트 모노머의 종류 및 함량에 관계없이 적용되지 않은 reference 점착 필름에 비해 박리강도와 신율이 현저히 감소함을 확인하였다. 반대로 인장강도의 경우는 삼관능 아크릴레이트 모노머가 적용된 경우가 그렇지 않은 경우에 비해 현저히 증가함을 확인할 수 있었다. 또한 삼관능 아크릴레이트 모노머의 종류와 관계없이 그 함량이 증가하면 박리강도와 신율은 감소하는 경향을 보이는 반면 인장강도는 증가

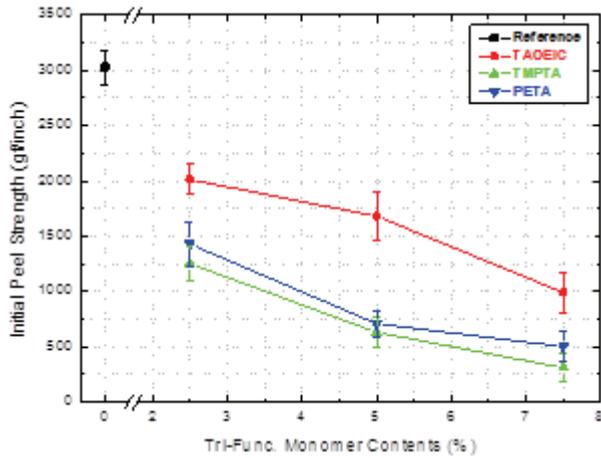


Figure 3. Initial peel strength of PSA films as a function of tri-functional acrylate monomers.

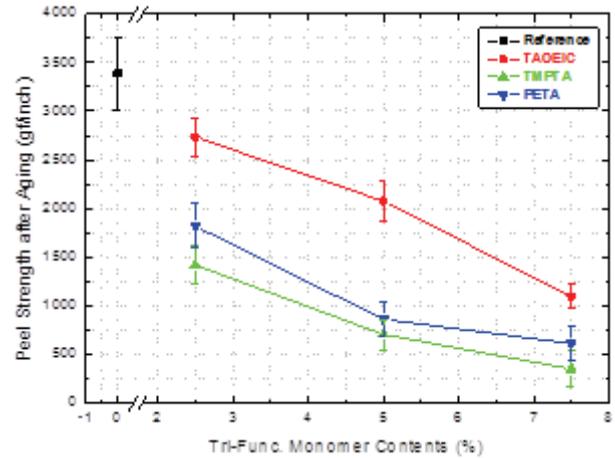


Figure 4. Peel strength of PSA films after aging as a function of tri-functional acrylate monomers.

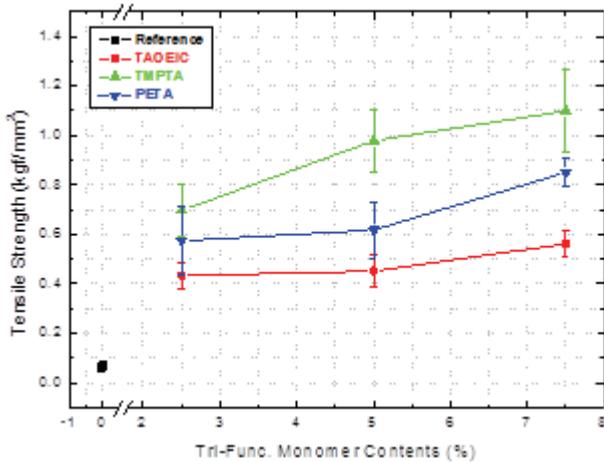


Figure 5. Tensile strength of PSA films as a function of tri-functional acrylate monomers.

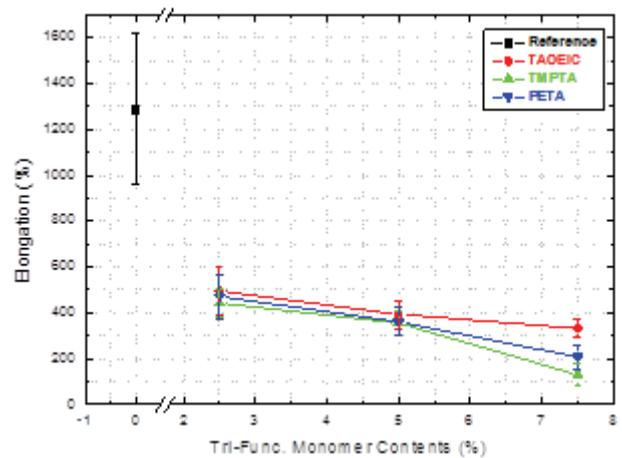


Figure 6. Elongation of PSA films as a function of tri-functional acrylate monomers.

하는 경향을 보였다.

이러한 경향은 적용된 삼관능 아크릴레이트 모노머의 영향으로 점착 필름의 경화밀도가 증가되어 감압 점착 필름의 SUS 기판에 대한 젖음성이 감소되는 동시에 경화수축에 의한 필름 내부 응력의 증가로 인해 점착 필름의 박리강도가 감소하는 것으로 판단된다. 신율의 저하 및 인장강도의 증가는 필름의 경화밀도 증가에 따른 내부 응집력의 증가가 주된 원인인 것으로 판단된다[28].

또한 평가된 3종의 삼관능 아크릴레이트 모노머의 종류에 따른 박리강도 측정 결과, TAOEIC → PETA → TMPTA 순으로 박리강도가 감소하는 경향을 보였다. 이러한 원인은 TAOEIC의 분자량이 PETA 및 TMPTA 대비 커서 동일한 함량으로 적용 되었을 때 경

화밀도 및 경화 수축율의 증가 효과가 PETA 및 TMPTA에 비해 미미하여 박리강도의 감소 효과가 작은 것으로 판단된다.

PETA와 TMPTA를 비교해보면 유사한 구조와 분자량을 가졌음에도 불구하고 PETA의 박리강도 감소 효과가 TMPTA 대비 작은 것을 확인할 수 있다. 이러한 경향을 보이는 이유는 PETA의 중심 탄소 원자에 결합된 hydroxyl group이 TMPTA 중심 탄소 원자에 결합된 methyl group에 비해 극성이 강하고, 강한 극성기의 존재는 감압 점착 필름 내부의 점도를 증가시켜 경화속도가 저하된다. 경화 속도의 저하는 경화 효율의 저하로 이어지고, 이에 따라 경화밀도 및 경화 수축율이 감소되어 박리강도의 감소 폭이 작은 것으로 판단된다 [29]. 더불어 PETA에 존재하는 hydroxyl group은 피착

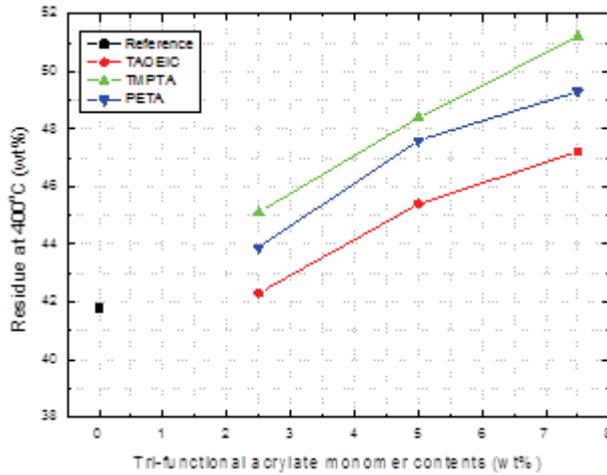


Figure 7. Thermal stability of PSA films as a function of tri-functional acrylate monomers.

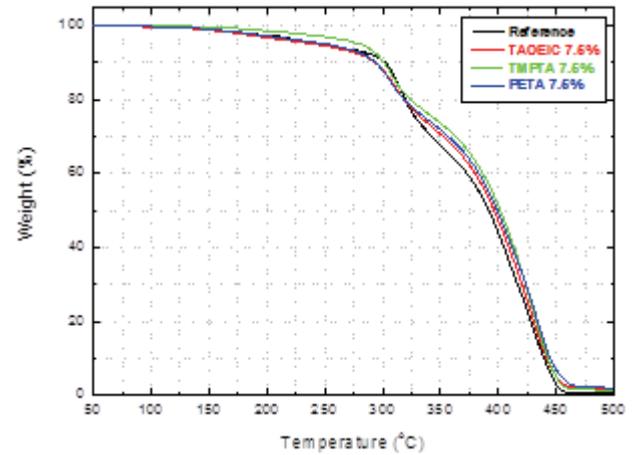


Figure 8. TGA graph of PSA films including 7.5 wt% of tri-functional acrylate monomers.

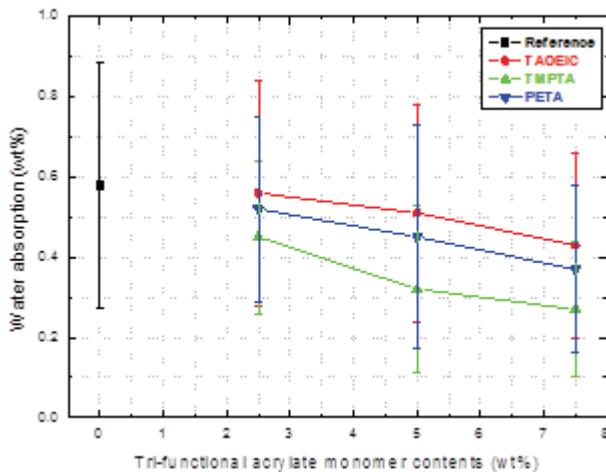


Figure 9. Water absorption properties of PSA films as a function of tri-functional acrylate monomers.

제와 물리적인 2차 결합을 형성할 수 있어 TMPTA를 적용한 경우에 비해 높은 박리강도를 보였다고 판단할 수 있다[30]. 이러한 PETA와 TMPTA의 중심 탄소에 결합된 치환기 효과는 인장강도 및 신율 면에서도 동일하게 작용하여 PETA를 적용한 경우가 TMPTA를 적용한 경우에 비해 낮은 경화밀도를 보이게 되어 상대적으로 높은 신율과 낮은 인장강도를 보인다고 판단된다.

3.3. 내열성 평가

삼관능 아크릴레이트 모노머의 종류 및 함량에 따른 내열 특성의 변화를 TGA를 사용하여 측정하였으며, 그 결과를 Fig 7. 및 Fig. 8에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이, 삼관능 아크릴레이트 모노머가 투입된 점

착 필름은 투입되지 않은 reference 필름에 비해 열분해 온도가 높아지는 것을 확인할 수 있다. 또한 삼관능 아크릴레이트 모노머의 함량이 증가할수록 점착 필름의 내열성이 증가함을 확인할 수 있었으며, 더불어 적용된 삼관능 모노머의 분자량이 감소할수록 내열성이 증가함을 확인하였다. 이는 삼관능 모노머의 함량이 증가할수록, 그리고 첨가된 삼관능 모노머의 분자량이 작아질수록 필름의 경화밀도가 증가되어 열분해 온도가 증가하는 것으로 설명할 수 있다. PETA와 TMPTA의 경우는, 앞서 언급하였듯이, 유사한 분자량을 가지고 있지만 PETA의 중심 탄소 원자에 결합된 극성이 강한 hydroxyl group의 영향으로 인한 점착 필름 내부의 점도 상승이 원인이 되어 PETA를 적용한 점착 필름의 경화 효율이 TMPTA가 적용된 점착 필름의 경화 효율보다 좋지 못하다. 이러한 원인으로 TMPTA를 적용한 점착 필름의 내열성이 PETA를 적용한 경우보다 우수하게 측정되었다.

3.4. 흡습을 평가

제조된 감압 점착 필름에 대한 흡습을 평가 결과를 Fig 9. 에 나타내었다. 삼관능 아크릴레이트 모노머의 함량이 증가할수록, 그리고 삼관능 아크릴레이트 모노머의 분자량이 작을수록 점착 필름의 흡습율은 감소함을 확인하였다. 이러한 경향은 삼관능 모노머의 함량이 증가할수록, 그리고 삼관능 모노머의 분자량이 작을수록 점착 필름의 경화밀도가 높아지게 되고, 결과적으로 흡습의 원인이 되는 점착 필름 내부의 자유부피를 감소시키는 효과로 인해 흡습율이 감소하는 것으로 판단된다. 분자량 및 구조가 비슷한 PETA와 TMPTA의 경우, TMPTA의 흡습율이 PETA 대비 현저

히 낮게 측정되었다. 이러한 경향은 PETA의 중심 탄소 원자에 존재하는 극성 hydroxyl group의 영향으로 TMPTA 대비 경화 효율이 떨어짐과 동시에 극성 hydroxyl group의 존재로 점착 필름과 물 분자 사이에 물리적인 인력이 작용하여 TMPTA 대비 높은 흡습율을 보이는 것으로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 tris(2-acryloyloxyethyl)isocyanurate (TAOEIC), trimethylolpropane triacrylate (TMPTA), 그리고 pentaerythritol triacrylate (PETA) 등의 삼관능 아크릴레이트 모노머가 감압 점착 필름의 특성에 미치는 영향에 대한 고찰을 진행하였다.

삼관능 모노머의 종류에 관계 없이 삼관능 모노머의 함량이 증가하면 감압 점착 필름의 경화밀도가 증가하고, 이에 따라 박리강도, 신율 및 흡습율이 감소하였으며 인장강도 및 열안정성은 증가함을 확인하였다.

삼관능 아크릴레이트 모노머의 종류에 따른 감압 점착 필름의 특성은 삼관능 모노머의 분자량과 구조에 영향을 받는 것으로 확인 되었다. TMPTA 및 PETA에 비해 비교적 분자량이 큰 TAOEIC의 경우는 상대적으로 낮은 경화밀도로 인해 박리강도, 신율 및 흡습율은 TMPTA와 PETA에 비해 높은 값을 보였으며, 인장강도 및 열안정성은 낮은 값을 보였다.

분자량이 비슷한 TMPTA와 PETA의 경우는 분자 구조에 의한 영향이 감압 점착 필름의 특성에 반영됨을 확인하였다. PETA의 경우 중심 탄소 원자에 결합된 극성의 hydroxyl group의 영향으로 점착 필름 내부의 점도가 상승되고, 이러한 점도의 증가는 경화속도에 영향을 주어 경화 효율이 저하되는 효과를 가져온다. 따라서 중심 탄소 원자에 methyl group이 결합되어 있는 TMPTA에 비해 경화밀도 및 경화 수축율이 작아 내부 응력의 분산이 용이하다. 더불어 극성의 hydroxyl group은 피착제와 물리적인 2차 결합이 용이하여 TMPTA에 비해 높은 박리강도를 보였다. 또한 TMPTA 대비 낮은 경화밀도로 인해 신율 및 흡습율은 TMPTA에 비해 높은 값을 보였으며, 인장강도 및 열안정성은 낮은 값을 보임을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 2019년 산업통상자원부 산업기술혁신사업 (과제번호 : 10067433)의 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

References

1. I. T. Son and J. H. Lee, *Journal of Adhesion and Interface*, **16(3)**, 122 (2015)
2. B. K. Joo, E. H. Song, B. H. Kang and T. Y. Kim, *Electronic Technology*, **9**, 10 (2014)
3. L. Hongbo, D. Jun, S. Wenfang, *Polymer Degradation and Stability*, **86**, 217 (2004)
4. K. Igor, S. Kenneth, G. Robert, *Journal of Applied Polymer Science*, **99**, 489 (2006)
5. J. S. Hwang, M. H. Kim, D. S. Seo, J. W. Won, D. K. Moon, *Microelectronics Reliability*, **49**, 517 (2009)
6. E. Dzunuzovic, S. Tasic, B. Bozic, D. Babic and B. Dunjic, *Progress in Organic Coatings*, **52**, 136 (2005).
7. M. Patel, J. Patel and K. Patel, *Chemical Science Transactions*, **1**, 289 (2012)
8. M. J. Cho, H. J. Kang, and D. B. Kim, *Journal of Adhesion and Interface*, **18**, 25 (2017)
9. B. K. Kim, K. H. Lee, and H. D. Kim, *Journal of Applied Polymer Science*, **60**, 799 (1996).
10. F. J. Hua and C. P. Hu, *Journal of Applied Polymer Science*, **77**, 1532 (2000)
11. B. J. Moon and S. H. Hwang, *Polymer (Korea)*, **35**, 183 (2011)
12. J. W. Yoo and D. S. Kim, *Polymer (Korea)*, **23**, 376 (1999)
13. T. Matynia, R. Kutyla, K. Bukat, and B. Pienkowska, *Journal of Applied Polymer Science*, **55**, 1583 (1995)
14. M. Bajpai, V. Shukla, and A. Kumar, *Progress in Organic Coatings*, **44**, 271 (2002).
15. T. Maruno, S. Ishibashi, and K. Nakamura, *Journal of Polymer Science, Part A: Polymer Chemistry*, **32**, 3211 (1994)
16. T. R. Williams, *Journal of Applied Polymer Science*, **31**, 1293. (1986)
17. M. J. Choi, B. Y. Jeong, J. M. Cheon, K. B. Park, and J. H. Chun, *Journal of Adhesion and Interface*, **18**, 8 (2017)
18. C. Bluestein, *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, **17**, 83 (1981)
19. J.H. Lee, S.D. Hong and Y.H. Kim, *Polymer (Korea)*, **37**, 2 (2013)
20. W. H. Shecut and H. H. Day, *US Patent 3,965* (1845)
21. I. Benedek, *Pressure-Sensitive Adhesives and Application*, 2nd Ed., Marcel Dekker, Inc., New York, (2004)
22. C. Creton, *Materials Science and Technology: A Comprehensive Treatment*, VCH, Weinheim, 1997.
23. S. M. Taghizadeh, D. Ghasemi, *Iran. Polym. J.*, **19**, 343, (2011)
24. B. K. Kim, D. S. Lee, C. H. Do, and H. M. Jeong, *Polyurethanes*, **1**, 329, (2006)
25. S. Akiyama, Y. Kobori, A. Sugisaki, T. Koyama, I.

- Akiba, *Polymer*, **41**, 4021, (2000)
26. K. M. Nam, et al., *Journal of Adhesion and Interface*, **18(4)**, 166 (2017)
 27. J. W. Won et al., *Journal of Adhesion and Interface*, **18**, 127 (2017)
 28. J. H. Sim, E. S. Seo, W. Y. Lee, and G. N. Kim, *Journal of Adhesion and Interface*, **18**, 159 (2017)
 29. J. W. Park, k. Y. Bae, P. S. Kim, D. H. Lim, H. J. Kim, J. K. Cho, B. J. Kim, and S. H. Lee, *Journal of Adhesion and Interface*, **11**, 57 (2010)
 30. S. S. Baek, S. J. Jang, S. H. Hwang, *Elastomers and Composites*, **49**, 199 (2014)