

***n*-Butyl Acrylate/Acrylic Acid 공중합체와 점착부여제간의 상용성과 점착물성**

민경은 · 김호겸[†] · 최관영 · 광기호

경북대학교 공과대학 고분자공학과

(1999년 12월 8일 접수)

The PSA Properties of *n*-Butyl Acrylate/Acrylic Acid Copolymer and Tackifier Resins with Influence of Miscibility

Kyung-eun Min, Ho-gyum Kim[†], Kwan-young Choi, and Ki-ho Kwak

Department of Polymer Science, Kyungpook National University, Taegu 702-701, Korea

[†]e-mail : Relayer@chollan.net

(Received December 8, 1999)

요약: 아크릴 공중합체와 점착부여제와의 상용성은 점착제의 물성에 영향을 주었다. 특히 높은 분자량과 좁은 분자량 분포를 가진 아크릴 공중합체가 혼합된 점착제는 상용계에 한해서만 점착 부여제의 함량증가에 따른 체계적인 물성 향상을 보였으며 이들 두 성분간의 상용성을 확인하는 것은 점착제의 물성에 매우 중요하다는 것을 알게 되었다.

ABSTRACT: The miscibility between acrylic copolymers and tackifier resins influenced on adhesion properties of PSA. PSA with high molecular weight and narrow molecular weight distribution of acrylic copolymers showed systematical modification of adhesion properties of PSA by tackifier resins only in case of miscible system. It is concluded that the investigation of the miscibility between two components is very important to adhesion properties of PSA.

Keywords: acrylic copolymer, PSA, miscibility.

서 론

감압성 점착제 (pressure sensitive adhesive, PSA)란 상온에서 점착성을 갖고, 단시간에 작은 압력으로 피착물에 점착하는 물질로서 통상적으로 '점착제'라고 부른다.¹ 초기에는 의료용 테이프로서 활용되기 시작하였으며, 현재에는 label, 양면테이프, 메모지 등 일상에서 쉽게 볼 수 있는 것들에서부터 건설, 토목, 자동차, 항공기에 사용되는 것들에 이르기까지 광범위한 분야에 널리 이용되고 있다. 점착제품은 점착제, 기재, 이형제의 3층 구조로 이루어져 있는데, 점착제로 사용되는 기질 고분자 화합물은 다시 크게 고무계와 acryl계, vinyl계, 실리콘계 등으로 대별되며, 점착제의 최종 점착 물성의 균형을 조절할 목적

으로 사용되고 있는 점착부여제는 그 구조에 따라 크게 로진 (rosin)계, 터펜 (terpene)계, 탄화수소 (hydrocarbon)계로 나뉘며, 이들은 기질 고분자에 비해 상대적으로 높은 유리전이온도와 낮은 분자량을 가져야 하며, 기질 고분자와는 상용성을 가져야 하는 등의 조건을 갖추어야 하는 것으로 알려져 있다.² Acryl계 점착제는 1900년대 초에 acrylic acid ester에 대한 연구로 시작되어 1927년 독일의 Rohm & Haas사에서 PMMA를 첫 상품화시킨 것을 계기로 점착제로서의 사용 가능성이 제기되어 1950년대에 이르러서 비로소 본격적인 상용화 단계에 착수되어 현재까지 각종 상품이 개발되어 오고 있는 실정이다.²

지금까지 acryl계 점착제에 대해서는 상품화와 관

련된 연구가 중점적으로 이루어져 왔는데, 특히 기질 고분자의 화학적 조성과 점착제의 최종 물성과의 관계에 대한 연구는 지속적으로 진행되어 온 반면, 기질 고분자의 분자량 및 분자량 분포와 점착 물성과의 상호 연관성에 대한 세밀한 연구는 문헌상으로 그리 많이 발표되지 않았다.

본 연구에서는 *n*-부틸아크릴레이트(*n*-butyl acrylate)를 기본 단량체로 하고, 아크릴산(acrylic acid)을 공단량체로 하여 이성분 아크릴 공중합체를 각기 다른 분자량으로 직접 합성하고 각종 점착부여제와의 상용성과 기질 고분자의 분자량 및 분자량 분포가 점착제의 점착 물성 중, 특히 박리강도(peel strength)와 전단강도(shear strength)에 미치는 영향에 대하여 알아 보았다.

실 험

시 약. 기질 고분자 합성을 위한 단량체로 Junsei Chemical사의 아크릴산(AA)과 *n*-부틸 아크릴레이트(*n*-BA)를 사용하였으며, 중합과 블렌드에 사용된 용매는 석산화학의 에틸아세테이트(ethyl acetate)를 사용하였다. 또한 중합 개시제로는 Junsei Chemical사의 α,α' -azobis(isobutyronitrile) (AIBN)을 사용하였다. 점착부여제로는 YS-polystar T-145, Superester A-115, Clearon K-4090의 세가지를 사

용했는데, 모두 Yasuhara Chemical로부터 제공받아 사용하였다. 이들의 기본적 물성은 Table 1에 나타내었다.

기질 고분자의 합성 및 분석. 본 실험에서는 열에 의한 라디칼 개시를 이용한 용액 중합법으로 기질 고분자를 합성하였다. 우선 *n*-부틸아크릴레이트와 아크릴산의 혼합비는 80:20 mol%로 하였으며, 분자량 및 분자량 분포는 개시제 함량으로 조절하였으며, 용매로는 에틸아세테이트를 사용하였다. 중합은 질소 분위기 하에서 환류냉각기를 장착한 2000 mL reaction kettle로 70 °C, 8시간 동안 실시했으며, solid content는 35% 정도로 하였다. 중합 후 3일 동안 실온에서 방치한 뒤 감압 하에서 1주일 건조시켜 용매를 제거시켰다. 제조된 기질 고분자의 핵자기 공명 스펙트럼은 Bruker Advance Digital 400 모델의 ¹H-NMR (nuclear magnetic resonance)을 사용하여 테트라메틸실란(TMS)을 내부 표준 물질로 하여 측정하였다. 유리전이온도는 Dupont 2000 Thermal Analyzer의 DSC (differential scanning calorimeter)로 측정하였다. 또한 합성된 기질 고분자의 분자량과 분자량 분포는 Shodex GPC Column(AT 805/S)과 RI detector (Waters R401)가 장착된 Waters사의 GPC (gel permeation chromatography)를 사용하였다.

점착제의 제조. 합성된 기질 고분자를 에틸아세테

Table 1. Tackifier Resins

tackifier resins	M_n^a	M_w^a	T_g^a (°C)	softening point ^a (°C)	modification of resins
YS polystar T-145 (R)	600~700	1200	87	145±5	pentaerythritol ester of disproportionated rosin
superester A-115 (R)	784	1102	71.4	115	pentaerythritol ester of disproportionated rosin
Clearon K-4090 (T)	793	1419	41.8	89	hydrogenated terpene resin

(R): rosin (T): terpene resin. ^a Quoted from catalogues.

Table 2. Copolymerization of *n*-Butyl acrylate with Acrylic acid

No.	copolymer composition ^a (mole%)		yield (%)	T_g^b (°C)	$M_n^c \times 10^{-4}$	$M_w^c \times 10^{-4}$	PDI ^d
	[M ₁]	[M ₂]					
P-1	83.1	16.9	95	0.98	8.51	57.06	6.68
P-2	82.3	17.7	98	2.49	7.21	41.16	5.71
P-3	83.3	16.7	98	1.55	4.03	19.54	4.85
P-4	84.7	15.3	95	2.00	2.20	45.13	20.48
P-5	83.6	16.4	94	1.86	1.79	35.71	19.97

[M₁]=*n*-Butyl acrylate, [M₂]=Acrylic acid. ^a Determined by ¹H-NMR. ^b Measured by DSC. ^c, ^d Measured by GPC.

이트에 용해시킨 뒤, 각각의 점착부여제와 기질고분자의 함량비를 0:100, 10:90, 20:80, 30:70, 40:60, 50:50, 60:40, 70:30, 80:20, 90:10 wt%로 하여 10가지 혼합물들을 만들었다. 이 혼합물들을 PET 필름(두께: 50 μm)의 코로나 처리된 표면 위에 bar coater로 25 μm 크기로 균일하게 코팅한 뒤, 실온에서 하루동안 건조시켰다.

상용성 측정. 점착제 제조시 필름에 코팅시키지 않은 용액상의 혼합물들을 slide glass위에 약 40 μm 두께로 코팅시킨 후, 실온에서 3일간 건조시켜 용매를 완전히 제거시켰다. 건조가 끝난 slide glass들을 hot-plate위에 3개씩 올려 고정시킨 뒤, 0 $^{\circ}\text{C}$ 에서 천천히 승온시키면서 육안으로 직접 온도 변화에 따른 slide glass의 투명성을 관찰하였다. 점착 부여제의 변색 때문에 200 $^{\circ}\text{C}$ 까지만 측정하였다.

점착물성 측정. 점착제의 박리강도는 피착체로부터 점착제 필름을 제거시키는데 요구되는 힘을 측정한 것으로,³ 본 실험에서는 180° peel test를 하였다. 우선 제조된 점착제 필름을 각각 25×220 mm의 크기로 paint가 도포된 동일한 패널 위에 붙인 뒤 compression roller를 사용하여 약 3 kg의 하중으로 일정하게 가압시킨 후, Instron사의 UTM (universal test machine)으로 박리속도 305 mm/min로 측정하였다. 전단강도는 점착제에 가해지는 외부 응력에 대한 저항력을 측정된 것으로,³ 점착제 필름을 각각 10×10 mm면적으로 역시 동일한 패널 위에 붙인 뒤 박리강도 측정과 마찬가지로 compression roller를 사용하여 가압시킨 다음 같은 박리속도에서 UTM으로 측정하였다.

결과 및 고찰

기질 고분자의 분석. Table 2는 합성된 많은 기질 고분자들 중 실험 목적에 맞추어 선별된 5가지 기질 고분자들의 각종 분석 결과를 나타낸 것이다. 기질 고분자들의 분자량은 수평균 분자량이 10000에서 80000정도이며, 중량평균 분자량은 약 200000에서 600000사이에서 나타났다. 분자량 분포는 P-1에서 P-3까지가 대체로 고른 것들로 다분산성 지수가 4에서 7사이의 값을 가지며, P-4와 P-5는 매우 넓은 것들로 20 전후의 값을 가지고 있다. 유리전이온도는

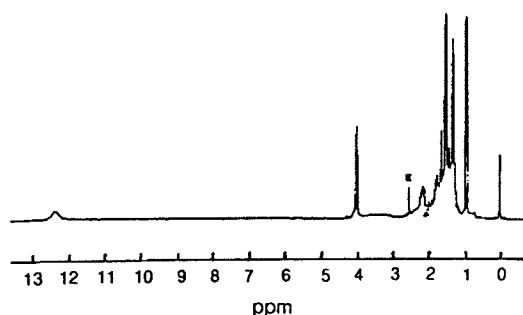


Figure 1. H-NMR spectra of copolymer P-2 in DMSO.

0 $^{\circ}\text{C}$ 근처에서 나타났다.

Figure 1은 합성된 여러 가지 기질 고분자중 P-2의 핵자기공명스펙트럼을 나타낸 것이다. 그림에서 화학적 이동, 갈라진 피크의 수 및 적분비로부터 4.1 ppm에서의 피크는 butyl기의 $-\text{CH}_2-$ 의 수소에 해당되며, 12.3 ppm에서는 acrylic acid의 $-\text{COOH}$ 의 수소 피크임을 확인 하였다. 또한 두 피크의 면적 비로부터 단량체의 투입비와 합성된 기질 고분자의 조성비가 거의 동일함을 확인할 수 있었다.

기질 고분자와 점착부여제 혼합물의 상용성. 앞서 실험 방법에서 언급한 대로 rosin계 점착부여제인 YS Polystar T-145와 기질고분자 혼합물의 온도 변화에 따른 투명성을 관찰한 결과 모든 기질고분자들에 대해 전 온도범위에서 점착부여제의 함량에 관계없이 투명하게 관찰되어 YS Polystar T-145는 기질고분자와 완전한 상용성을 가지는 것으로 판단되었다. 고무계 기질고분자와 상용성이 좋은 것으로 알려져 있는 같은 rosin계 점착부여제인 Superester A-115와 기질 고분자 혼합물의 투명성을 확인해 본 결과, 모든 기질고분자에 대해 점착부여제의 함량에 관계없이 대체적으로 100 $^{\circ}\text{C}$ 이상의 고온까지 불투명하게 관찰되어 비상용성의 경향이 뚜렷함을 알 수 있었으며, 앞서 확인한 rosin계 점착부여제들과는 다른 화학적 구조를 가지는 터펜 (terpene)계 점착부여제인 Clearon K-4090과 기질고분자 혼합물의 투명성을 확인한 결과 모든 기질고분자들에 대하여 점착부여제의 함량이 공통적으로 70 wt%까지는 대부분 불투명하게 관찰된 반면, 80 wt% 이상에서부터는 이러한 불투명성이 나타나는 영역의 범위에 차이를

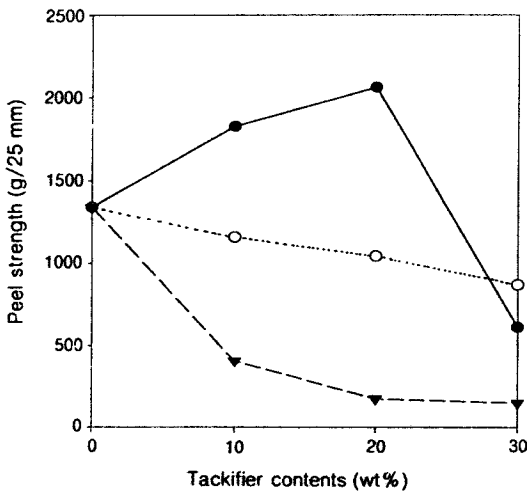


Figure 2. Plot of peel strength for P-1 and tackifier system (●: YS Polystar T-145, ○: Superester A-115, ▼: Clearon K-4090).

보였으나 대체적으로 비상용성을 갖는 것으로 확인되었다.

점착부여제의 첨가에 따른 점착물성의 영향. 점착제의 초기 점착력 (tack)은 아주 작은 압력으로 단시간에 피착물과 결합을 형성할 수 있는 능력을 말하며,² 본 실험에서는 모든 점착제들에 대해 점착부여제의 함량이 40 wt% 이상에서부터는 패넬에 점착제 필름을 부착시킬 수 없을 정도로 초기 점착력이 떨어져 결과는 점착부여제의 함량이 30 wt%일 때까지만 측정되었다. 이것은 전단강도 측정결과에서도 마찬가지로였으며 점착부여제가 40 wt% 이상 첨가되면 부터는 Dahlquist criterion에서 크게 벗어나는 것이 아닌가 생각된다.⁴

P-1, P-3와 점착부여제들의 함량에 따른 점착물성의 변화를 각각 Figure 2와 3에 나타내었다. 우선 두 그림에서 상용체인 YS Polystar T-145가 첨가된 점착제들의 경우에는 대체로 점착부여제의 함량이 증가할수록 박리강도도 큰 폭으로 증가하다가 다시 감소하는 경향을 보였는데, 이것은 박리강도의 경우 박리에 의한 파괴 거동이 계면 파괴 (adhesion failure)이므로 피착체와의 계면에서의 상호작용이 박리강도에 크게 영향을 주게 되며 따라서 점착부여제가 첨가됨에 따라 피착체 표면에 대한 초기 점착력이 향상되므로 어느 정도의 함량까지는 박리강도가 증가하

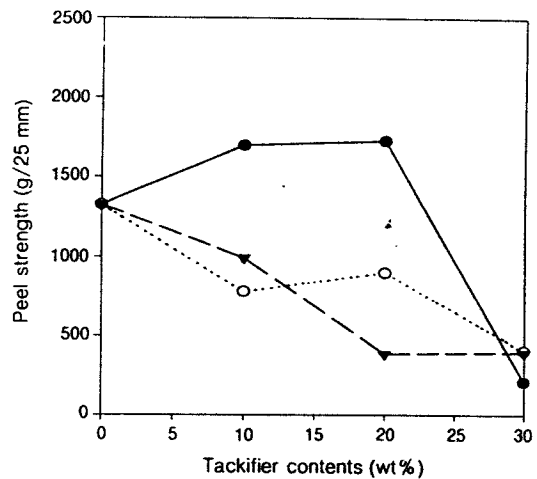


Figure 3. Plot of peel strength for P-3 and tackifier system (●: YS Polystar T-145, ○: Superester A-115, ▼: Clearon K-4090).

는 것으로 판단된다. 반면 기질 고분자와 비상용성을 보였던 나머지 두 점착부여제가 첨가된 점착제들의 경우 Figure 3에서처럼 오히려 점착부여제를 첨가하지 않은 것보다 값이 낮게 나타나거나 불규칙적인 증감 형태를 보이는 등 점착부여제의 함량 증가에 따른 박리강도의 뚜렷한 경향성이 나타나지 않는 것을 알 수 있었다. 이것은 점착부여제와 기질 고분자간의 상용성이 박리강도에 크게 영향을 미친다는 것을 의미하는 것으로 판단된다.

Figure 4와 5는 각각 기질고분자로 P-1, P-4가 혼합된 점착제들의 점착부여제의 함량에 따른 전단강도의 변화를 나타낸 것으로, 두 경우 모두 상용체인 YS Polystar T-145가 첨가된 점착제들은 점착부여제의 함량이 증가될수록 대체적으로 전단강도 h 는 작은 감소폭으로 서서히 값이 떨어지는 경향을 나타냈는데, 이것은 전단력에 의한 점착제의 파괴 거동이 응집 파괴 (cohesive failure)이므로 전단강도는 피착체와의 계면간의 관계보다는 점착제 자체의 내부인력 (internal strength)과 보다 더 연관되어 있으며, 점착부여제가 첨가됨에 따라 그만큼 외력에 의한 분자간의 사슬 풀림 (chain slip)이 잘 일어나기 때문에 감소하는 것으로 생각된다. 반면, 비상용체인 나머지 두 점착부여제가 첨가된 점착제들의 경우 점착부여제들의 함량 증가에 따라 값이 큰 폭으로 떨어

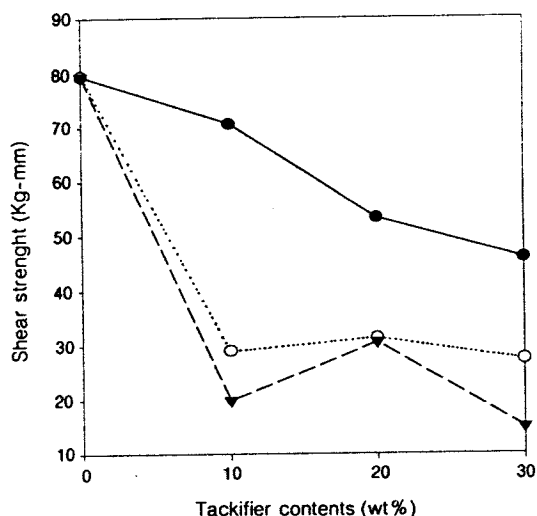


Figure 4. Plot of shear strength for P-1 and tackifier system (●: YS Polystar T-145, ○: Superester A-115, ▼: Clearon K-4090).

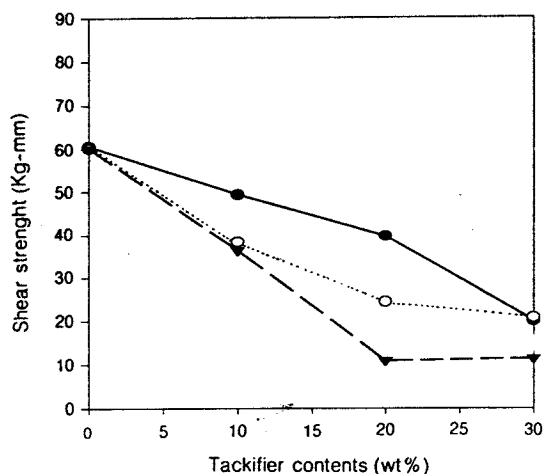


Figure 5. Plot of shear strength for P-4 and tackifier system (●: YS Polystar T-145, ○: Superester A-115, ▼: Clearon K-4090).

지거나 앞서 박리강도와 마찬가지로 경향성이 없는 증감 형태를 나타내어 역시 기질 고분자와 점착부여제와의 상용성이 점착제의 전단강도에도 큰 영향을 준다는 것을 알 수 있었다.

기질고분자의 분자량 및 분자량 분포의 영향. 먼저 박리강도의 경우 YS Polystar T-145가 첨가된 상

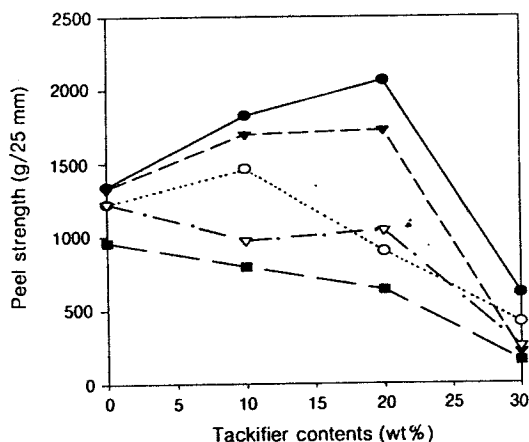


Figure 6. Plot of peel strength against molecular weight for P-1 with YS Polystar T-145 system (●: P-1, ○: P-2, ▼: P-3, ▽: P-4, ■: P-5).

용계에서는 Figure 6에서 알 수 있듯이 대체로 분자량이 큰 기질고분자들과의 혼합물들은 점착부여제의 함량이 증가함에 따라 큰 증가폭으로 값이 상승했다가 다시 큰 폭으로 떨어지는 경향을 보인 반면, 분자량이 낮은 기질고분자들이 혼합된 점착제들은 그에 비해 증가폭이 작거나 오히려 값이 감소추세를 보였다. P-1과 P-2와 같이 분자량이 크고 분자량 분포도 고른 기질고분자가 혼합된 점착제들이 그렇지 못한 점착제보다 같은 점착부여제의 함량에서 비교했을 때 대체로 값이 더 크다는 것을 알 수 있으며, 특히 P-3의 경우, 분자량은 P-2보다 작지만 박리강도의 증가폭은 오히려 더 큰 것은 분자량 분포의 영향으로 판단된다. 이것은 기질 고분자의 분자량이 크고 고른 분자량 분포를 가지는 경우일수록 분자간력이 증가하고 사슬 유연성 (chain mobility)이 줄어들어 그만큼 박리에 대한 저항력이 증가하는 것으로 생각되며, 점착부여제가 첨가되면 계면에서의 초기 점착력이 보다 향상되어 더 큰 박리강도가 발현되는 것으로 판단된다. 반면 비상용계인 Superester A-115와 Clearon K-4090가 첨가된 점착제들의 경우 Figure 7과 8에서 각각 알 수 있듯이 대체로 분자량의 대소와 관련 없이 점착부여제를 첨가하지 않았을 때보다 값이 감소하는 경향을 나타냈다. 특히 이러한 감소 추세는 Figure 8의 Clearon K-4090이 첨가된 점착제들의 경우 더욱 뚜렷이 나타났으며, 일부 점착제의 경우

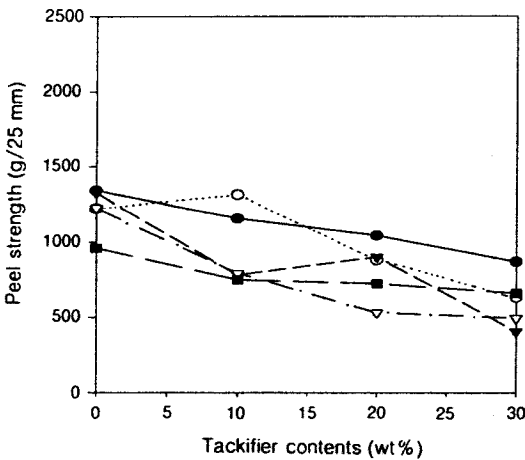


Figure 7. Plot of peel strength against molecular weight for P-3 with Superester A-115 system (●: P-1, ○: P-2, ▼: P-3, ▽: P-4, ■: P-5).

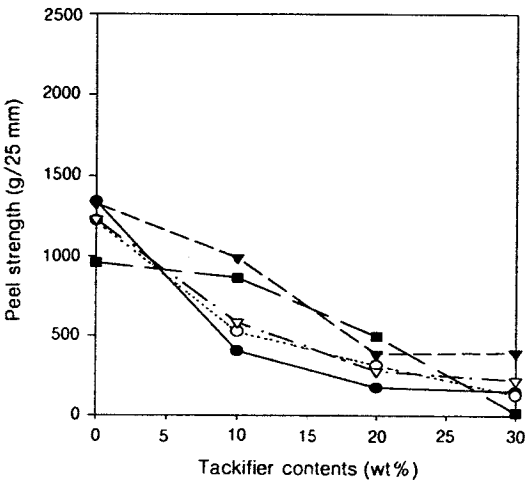


Figure 8. Plot of peel strength against molecular weight of P-5 with Clearon K-4090 system (●: P-1, ○: P-2, ▼: P-3, ▽: P-4, ■: P-5).

불규칙한 증감형태를 보이기까지 했다. 즉 비상용계에서는 기질고분자의 분자량이나 분자량 분포를 통한 박리강도의 개선을 기대하기가 어렵다는 것을 알 수 있으며, 반면 상용계에서는 앞서 결과에서 확인한 바와 같이 이들을 통한 체계적인 박리강도의 개선이 가능하다는 것을 알 수 있다.

다음으로 전단강도의 경우를 보면, 점착 부여제로 YS Polystar T-145가 첨가된 상용계에서는 Figure 9

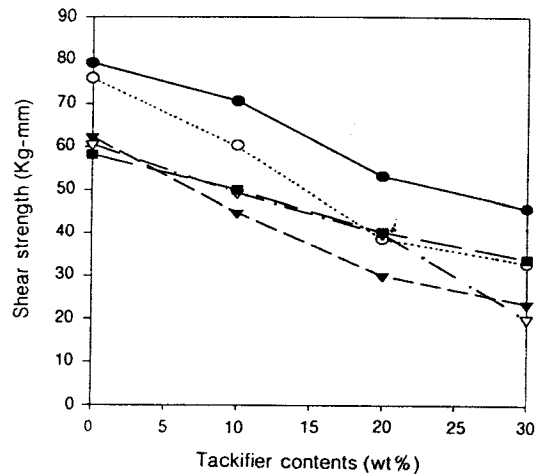


Figure 9. Plot of shear against molecular weight for P-1 with YS Polystar T-145 system (●: P-1, ○: P-2, ▼: P-3, ▽: P-4, ■: P-5).

에 나타났듯이 모든 점착제에 대해 값이 감소하는 경향을 보였으며, 특히 기질고분자의 분자량이 크고 분자량 분포가 고른 P-1과 P-2가 혼합된 점착제들의 경우 나머지 점착제들보다 같은 점착부여제의 함량에 대해서 비교했을때 더 큰 값을 나타냈고, 특히 분자량이 더 큰 P-1의 경우 전체적으로 함량 증가에 따른 감소폭도 작게 나타났다. 반면 기질고분자의 분자량은 크지만 분자량 분포는 넓은 P-4와 P-5의 경우에는 감소폭은 비교적 작지만 같은 점착부여제 함량에서 비교해 보면 다른 점착제들에 비해 전단강도 값은 작게 나타났다. 이것은 기질고분자의 분자량이 크고 분자량 분포가 고를수록 점착제의 분자간 얽힘이나 인력의 세기가 증가하고 그로 인한 응집력의 강화에 의해 외부 응력에 대한 저항력이 그만큼 커졌기 때문인 것으로 판단된다. Figure 10과 11에서는 각각 점착부여제로 Superester A-115와 Clearon K-4090를 혼합한 비상용계 점착제들의 결과를 나타낸 것으로, 두 경우 모두 P-1과 P-2가 혼합된 점착제들에 대해서는 공통적으로 점착부여제가 10 wt%가 첨가되자 큰 폭으로 감소하여 Superester A-115가 첨가된 경우엔 Figure 10에서 처럼 그 이상의 함량에서는 비슷한 값을 나타낸 반면, Clearon K-4090이 첨가된 경우인 Figure 11에서는 값이 약간 증가하다가 떨어지는 경향성 없는 증감 형태를 보였다. 나머지 점착제들의 경우에도 분자량의 대소나 분자량

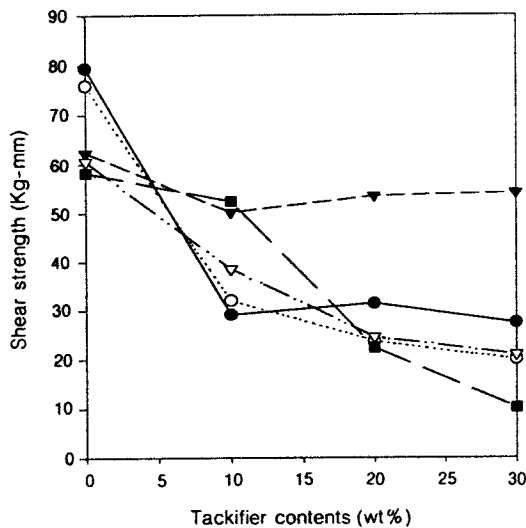


Figure 10. Plot of shear strength against molecular weight for P-3 with Superester A-115 system (●: P-1, ○: P-2, ▼: P-3, ▽: P-4, ■: P-5).

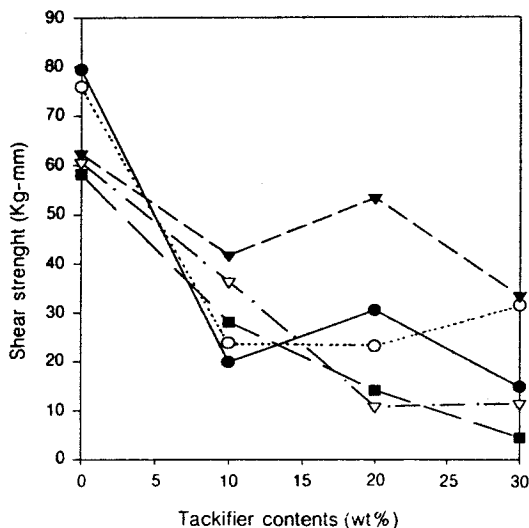


Figure 11. Plot of shear strength against molecular weight for P-5 with Clearon K-4090 system (●: P-1, ○: P-2, ▼: P-3, ▽: P-4, ■: P-5).

분포의 차이가 점착부여제의 함량 증가에 따른 전단강도 값의 변화와 별다른 상호 연관성이 없는 것으로 나타내었다. 이것은 앞서 박리강도의 결과와 마찬가지로 기질고분자의 분자량과 분자량 분포를 통한 점착제의 전단강도의 개선은 상용계에 한해서만 체계적

인 효과를 볼 수 있다는 것을 의미한다고 생각한다.

결론

기질고분자와 점착부여제와의 상용성은 점착제의 박리강도와 전단강도의 두 점착물성에 큰 영향을 주며, 특히 상용계에서는 모든 점착제에 대하여 점착부여제의 함량이 증가할수록 박리강도는 최고점을 그리며 다시 감소되는 경향을 보였으며, 전단강도의 경우엔 대체로 감소하는 경향을 보였다. 하지만 비상용계에서는 점착부여제의 함량에 따른 체계적인 증감 형태를 보이지 않아 점착부여제의 선택에 있어서 기질고분자와의 상용성이 가장 큰 조건이라는 것을 알 수 있었다. 기질고분자의 분자량과 분자량 분포 또한 점착부여제와의 상용성 여부에 따라 두 점착물성에 큰 영향을 주는 것으로 나타났는데, 상용계에서는 대체로 기질고분자의 분자량이 크고 분자량 분포가 고른 점착제가 그렇지 않은 것들보다 더 큰 폭으로 박리강도가 향상되어 물성 개선에 효과적인 것으로 나타났으나 비상용계에서는 기질고분자의 분자량과 분자량 분포가 점착제의 박리강도에 대해 이렇다할 영향을 주지 못하는 것으로 나타났다. 전단강도의 경우도 마찬가지로 상용계에서는 기질고분자의 분자량이 크고 분자량 분포가 고를 수록 그렇지 않은 것들보다 대체로 감소폭이 작게 나타난 반면, 비상용계에서는 역시 별다른 영향을 주지 못하는 것으로 나타났다.

참고문헌

1. H. J. Kim and H. Mizumachi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **56**, 201 (1995).
2. Donatas Satas, "Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology", 2nd. Ed., chap. 5, Van Nostrand Reinhold Co., New York, 1989.
3. M. Toyama, "Pressure Sensitive Adhesive", chap. 3, Polymer Publication, Tokyo, 1991.
4. K. Fukuzama, "Pressure Sensitive Adhesive Technology", Polymer Publication, Tokyo, 1987.
5. C. A. Dalquist, "Treatise on Adhesion and Adhesives", ed. by R. L. Patrick, p. 219, Marcel Dekker, New York, 1969.
6. Donatas Satas, "Handbook of Pressure Sensitive

- Adhesive Technology", 2nd. Ed., chap. 15, Van Nostrand Reinhold Co., New York, 1989.
7. Donatas Satas, "Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology", 2nd. Ed., chap. 6, Van Nostrand Reinhold Co., New York, 1989.
8. Donatas Satas, "Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology", 2nd. Ed., chap. 20, Van Nostrand Reinhold Co., New York, 1989.
9. H. J. KIM and H. Mizumachi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **58**, 1891 (1995).
10. H. J. KIM and H. Mizumachi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **57**, 175 (1995).
11. M. Fujita, M. Kajiyama, A. Takemura, H. Ono, and H. Mizumachi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **64**, 2192 (1997).
12. I. Benedek and L. J. Heymans, "Pressure Sensitive Adhesive Technology", chap. 6, Marcel Dekker, New York, 1990.
13. J. Greenan and R. H. Montgomery, *Adhesive Age.*, **12**, 28 (1969).
14. W. W. Lim and H. Mizumachi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **66**, 525 (1997).
15. B. Y. Kim, "Acrylic Resines", Daegwang, Seoul, 1995.
16. I. H. Park, "Application and Testing of Adhesives", chap. 6, Korea Chemical Research Institute, 1994.
17. I. Skeist, "Handbook of Adhesives", 2nd. Ed., Van Nostrand Reinhold Co., New York, 1977.