

자외선 경화형 아크릴 양면 점착테이프의 두께 및 무기물 충전제 종류에 따른 접착특성

김동복[†]

광에너지소재연구센터, 단국대학교 고분자공학과

(2014년 2월 20일 접수, 2014년 3월 13일 수정, 2014년 3월 17일 채택)

Effects of Tape Thickness and Inorganic Fillers on the Adhesion Properties of Double-sided Acrylic Adhesive Tape by Ultraviolet Curing

Dong-Bok Kim[†]

Center for Photofunctional Energy Materials, Dept. of Polymer Science and Engineering, Dankook University,
#126 Jukjeon-dong, Sugi-ku, Yongin-si, Gyeonggi-do 448-701, Korea

(Received February 20, 2014; Revised March 13, 2014; Accepted March 17, 2014)

초록: 본 연구는 고성능 준구조용 양면 점착테이프 제조를 위해 2-ethylhexyl acrylate(2-EHA)와 acrylic acid(AAC)를 사용하였고, UV 조사에 의해 시럽을 준비하였다. 양면 점착테이프의 두께, 무기물 충전제 함량 및 충전제 종류에 따른 준구조용 물성에 미치는 영향을 고찰하였다. 테이프의 두께 및 젖음시간이 증가할수록 박리강도가 증가하였다. 두께가 얇은 점착테이프(250 μm 이하)의 경우 무기물 충전제의 true density가 낮을수록 적용시간 경과에 따라 박리강도가 높게 나타났다. 무기물 충전제 입자가 클수록 초기 박리강도가 높게 나타났으며, SEM 이미지를 통해 점착테이프 내에 무기물 충전제의 크기를 확인하였다. 다양한 무기물 충전제 및 함량에 따라 박리강도 증가와 함께 전단접착강도가 증가하는 비례관계를 보였으며, 0.1 μm 인 양면 점착테이프에서 무기물 충전제는 전단접착강도에 더 영향을 주었다. 이러한 결과로부터 박막형 아크릴 양면 점착테이프는 준구조용 물성을 필요로 하는 용도에 사용 가능할 것으로 사료된다.

Abstract: To manufacture of high-performance semi-structural double-sided adhesive tape, 2-ethylhexyl acrylate (2-EHA) and acrylic acid (AAC) were used, and the syrup was prepared by UV irradiation in this study. The effects of the thickness, various inorganic filler contents, and filler types on the semi-structural properties of acrylic double-sided adhesive tape were investigated. The peel strength increased with increasing thickness and wetting time. In case of the thin thickness (under 250 μm) with decreasing true density of inorganic filler, the peel strength increased with increasing wetting time. The initial peel strength showed a higher value at a big size of inorganic filler, and the filler's size in adhesive tapes was confirmed by SEM images. The peel strength and dynamic shear strength increased as a proportional relationship with various inorganic fillers and contents, and these inorganic fillers in 0.1 μm thickness indicated more effect on the dynamic shear strength of double-sided adhesive tape. From these results the thin acrylic double-sided adhesive tape determined to be use for applications as a high-performance semi-structural.

Keywords: UV curing, double-sided adhesive tape, inorganic filler, peel strength, dynamic shear strength.

서론

자동차, 전기전자, 디스플레이 및 산업전반에 사용되는 점착제는 아크릴, 실리콘, 우레탄, 에폭시 등으로 구별할 수 있다. 아크릴 점착제는 실리콘 점착제보다 가격이 저렴하고 우레탄, 에폭시 등에 비해 점착제 설계가 용이하고 다양한 피

착재에 적용할 수 있는 장점이 있다. 최근들어 소재의 다양화, 경량화의 요구가 증가하면서 소재의 접합을 볼트나 리벳을 이용한 기존공정에서 점착 간소화 공정으로 전환되고 있으며 디스플레이 부품 및 모바일 폰 등에 적용하는 소재도 박막형 점착테이프를 요구하고 있다.^{1,2} 이러한 소재의 경박단소에 따라 이를 접합하는 점착제의 두께는 기존보다 더 얇아야 하고 제조공정 중 작업불량으로 인한 재작업이 용이해야 하는 부가적인 특성을 가져야 한다.

점착제는 일반적으로 라디칼 개시제를 사용하여 용제 하에

[†]To whom correspondence should be addressed.
E-mail: koreakdb@dankook.ac.kr

중합하거나 무용제 하에서 중합을 하여 얻은 고분자와 일정량의 경화제와 반응시켜 접착 특성을 발현시킨다. 용제가 포함된 고분자량의 중합체는 용제의 건조와 함께 경화제와 반응하여 가교구조를 형성하여 고분자의 분자량과 분자사슬의 기능 그룹에 따라 접착력을 다양하게 구현할 수 있다.^{3,4} 무용제 하에서 중합된 고분자는 핫멜트 타입과 자외선(UV) 중합형으로 구별할 수 있는데 핫멜트 타입은 별도의 경화제를 투입하지 않는다 하더라도 가열에 의해 접착력을 발현시키며 다양한 소재들이 접착소재로 사용되며, UV 중합형은 UV 조사에 의해 반응하는 광개시제에 의해 중합 및 경화되는 것으로 특수한 광조사 장치가 필요하다.

점착테이프는 점착제와 경화제를 혼합한 용액을 일정두께로 성형하는 코팅기에 투입한 후 포함된 용제의 건조 및 경화에 의해 테이프로 제조된다. UV 경화형 점착테이프는 1단계로 중합된 UV 중합체에 추가로 광개시제 및 경화제를 혼합하고 코팅기에 투입하여 UV 조사에 의해 테이프로 제조된다. 두 공정의 차이점은 용제의 유무이며 무용제 UV 경화형의 경우 광개시제의 반응성을 유지하기 위해 코팅 시 산소의 차단을 위한 2장의 폴리에스터(PET) 필름을 사용한다. 공통적으로 PET 필름 또는 부직포같은 기재를 사용한 점착테이프는 기재형 단면테이프이며, 실리콘이나 왁스 등의 이형제를 처리한 PET 필름을 사용하면 공정 후 이형 PET 필름을 제거하기 때문에 무기재형 양면테이프라고 한다. 무기재 형태의 양면 점착테이프는 부품 접합을 위해 일반적으로 적용하여 왔던 저점도의 속경화 타입 점착제보다 쉽게 적용할 수 있고, 적용 후에도 쉽게 제거할 수 있는 장점이 있어 산업현장에 많이 이용되고 있다.^{3,4}

UV 경화형 점착제는 1단계에서 광중합이 이뤄진 고분자 물질에 광개시제 및 가교제를 추가로 혼합하여 코팅한 후 2단계에서 광조사에 의해 경화를 시키는 방법을 사용한다. UV 중합 및 경화에 의한 점착테이프 제조방법은 유기용제를 사용하지 않으므로 친환경 제조방법 중 하나로 각광받고 있으며 짧은 시간 내에 고분자량의 중합물을 얻으므로 에너지 절감을 이룰 수 있고 무용제이기 때문에 유기화합물 배출에 의한 공해문제가 없다.⁵⁻⁹ UV 경화형 점착테이프의 제조공정은 상기에 언급한 두 가지 공정이 순차적으로 연결되는 과정이라고 할 수 있다. 1단계 공정은 광조사에 의해 아크릴 모노머가 저점도 중합체가 되는 과정이고, 2단계는 1단계에서 얻어진 중합체에 다관능성 가교제와 광개시제를 추가하여 교반한 후 일정한 두께로 코팅하여 UV 조사에 의한 가교공정을 말한다.^{10,11}

UV 경화 방식에 의해 제조된 양면 점착테이프는 자동차 분야를 포함한 산업용의 경우 400 μm (0.4 T)~3000 μm (3 T) 정도의 후막을 많이 사용하고 있으며 그 이하의 두께는 많지 않다. 그 이유는 점착테이프의 두께가 얇아질수록 접착력이 저하될 뿐만아니라 UV 경화형의 경우 두께가 얇아질수록 이

형 PET 필름의 분리 등 공정상의 어려움이 있다. 그러나 최근들어 코팅방식의 발전과 LED 등에 방열소재를 이용한 기능성 점착테이프의 요구가 증가하면서 0.4 T 보다 얇은 박막형 양면 점착테이프의 적용이 시도되고 있으며 높은 접착력을 필요로 하므로 UV 경화 방식에 의해 제조된 준구조용 박막형 점착테이프에 대한 수요가 점차 증가하고 있다.

따라서 본 연구는 0.4 T를 기준으로 후막과 박막을 구분하여 양면 점착테이프를 두께별로 각각 준비하여 박리강도 및 전단접착강도를 비교하고자 하였으며 소재의 경량화 및 슬림화에 따라 후막과 동등한 물성을 발현시키기 위해 다양한 무기물 충전제를 검토하여 충전제의 크기 및 분포에 따라 제조된 박막형 양면 점착테이프의 접착력과 내부 응집력을 고찰하여 최적화된 점착물성을 발현시키고자 하였다.

실 험

시약 및 재료. 아크릴 점착제 중합을 위해 2-ethylhexyl acrylate(2-EHA, Samchun Chemical Co., Ltd., S. Korea)와 acrylic acid(AAC, Samchun Chemical Co., Ltd., S. Korea)를 사용하였으며 UV 중합시 라디칼 반응을 위해 광개시제로 1-hydroxycyclohexyl phenyl methanone(PI, Irgacure 184, BASF)를 사용하였다. 1단계에서 중합된 UV 시럽을 2단계에서 UV 조사에 의한 가교반응을 위해 광경화제로 1,6-hexanediol diacrylate(HDDA, Miwon Specialty Chemical, S. Korea)를 사용하였다. 무기물 충전제는 Table 1에 나타내었으며 3M사에서 공급받은 입자의 크기 및 분포가 다양한 6종의 SiO_2 를 사용하였으며 true density가 0.05~0.6 g/cm^3 , 입자크기가 10~120 μm 인 것을 사용하였다.

UV 중합 및 아크릴 점착제 조성. 본 연구에서 2-EHA를 주단량체로 하고 AAC를 공단량체로 하는 2성분 아크릴계 공중합체를 제조하였으며 UV 조사에 의한 아크릴 시럽 제조 후(1 단계) 시럽에 무기물 충전제를 혼합하여 코팅 및 UV 경화(2 단계)에 의해 양면 점착테이프를 제조하였다. 각 단계별 사용한 광개시제, 경화제 및 무기물 충전제 함량은 Table 2

Table 1. Various SiO_2 Fillers for Double-sided Adhesive Tape

Sample code	True density (g/cm^3)	Particle size(μm , by volume)			
		Distribution			Top size (95%)
		10 th%	50 th%	90 th%	
S-1	0.150	25	55	90	95
S-2	0.220	20	35	65	75
S-3	0.600	10	30	55	65
S-4	0.125	30	65	115	120
S-5	0.150	30	60	105	115
S-6	0.250	35	55	90	105

Table 2. The Components for Acrylic Syrup and Double-sided Adhesive Tape

Step	2-EHA (wt%)	AAC (wt%)	PI (phr)	HDDA (phr)	Filler (phr)
1	90	10	0.05		
2	90	10	0.2	0.1	0, 5~10

에 표시하였다.

1단계 UV 조사에 의한 공중합체 제조를 위해 반응시간은 20~30분으로 하였고, 이때 사용한 반응기는 수은 램프(UVA spot 400/T, Dr. Hönle)가 장착된 5 L 용량의 내부에 Cr이 코팅된 batch type으로 반응 시 외부 빛을 차단하였다. UV 램프는 최대 흡광 파장대가 365 nm이며 UV 강도는 30 mW/cm²이었고 질소 분위기하에서 산소 농도가 0.3 ppm 이하인 조건에서 진행하였다. 제조된 UV 시럽은 빛이 차단된 보관 용기에 넣고 질소기체를 충전시켜 보관하였다. 양면 점착테이프 제조를 위해 Table 2에 표시한 것처럼 광개시제와 HDDA를 추가하고 무기물 충전제를 각각 혼합하여 코팅 및 UV 경화에 의해 양면 점착테이프를 준비하였다.

무기물 충전제 혼합 및 양면 점착테이프 제조. Table 2와 같이 UV 조사에 의해 1단계에서 중합된 시럽에 무기물 충전제(0, 5~10 phr), 가교제 및 광개시제를 투입하여, 30분 동안 교반 후 각각의 두께로 코팅하여 2단계에서 추가 UV 조사에 의해 경화시켜 양면 점착테이프를 제조하였다. 코팅은 실리콘으로 이형처리된 PET 필름(도레이세한) 위에 일정량의 시럽을 투입하고 그 위에 이형처리된 또다른 PET 필름을 덮고 롤을 통과시켜 상·하부에 UV lamp(저압수은, 한성자외선)가 설치된 장치에서 다음의 조건으로 경화시켰다. UV lamp는 최대 출력에너지가 40 W인 것을 상하 각각 2개씩 배치한 것으로 경화시간은 10분으로 하였으며 UV lamp로부터 시트까지의 거리는 각각 15 cm로 하였고 10분 간의 UV 조사 누적 광량은 단면기준 1500 mJ/cm²이었다.

양면 점착테이프의 밀도 측정. 양면 점착테이프의 밀도는 ASTM D792 방법에 의해 측정하였다. 양면 점착테이프의 크기를 25 mm×25 mm로 자른 후 시편의 두께 및 질량을 측정하여 식 (1)로부터 부피와 질량을 측정하여 대입하므로 밀도를 계산하였다.

$$D = W/(X \times Y \times Z) \quad (1)$$

D: Sample density [g/cm³]

W: Measured weight of the sample [g]

X, Y, Z: 가로, 세로, 두께 [mm]

양면 점착테이프의 물성 측정. 180° 박리강도(Peel Strength) 측정: 180° 박리강도 측정을 위해 피착재 시험편을 알콜로 세척하여 준비하고, 박리강도는 ASTM D-3330의

규정을 참조하여 폭 25 mm, 길이 250 mm의 테이프에 테스트 중 시험편이 늘어나지 않도록 뒷면에 50 PET 필름을 붙이고 준비된 시험편에 부착시키고 6.8 kg의 압착 롤러로 300±30 mm/min의 속도로 1회 왕복하여 압착하고, 압착 후 시간경과에 따라 20분 및 24시간 시점에 시험편의 끝 부분을 180°로 되접어 300±30 mm/min의 속도로 측정하였다. 50 mm까지 박리하였을 때의 값을 각 샘플당 3회의 실험 평균치를 결과로 하였다.¹²

전단점착강도(Dynamic Shear Strength) 측정: 전단점착강도 측정은 ASTM D-1002의 규정을 참조하여 시험편을 세척하여 준비하고, 점착테이프를 폭과 길이를 각각 25 mm×25 mm로 하여 미리 준비된 피착재 시험편(가로×세로=50 mm×125 mm) 모서리에 부착한 후 동일 크기의 다른 시험편에 부착시킨 다음 6.8 kg의 압착 롤러로 300 mm/min의 속도로 1회 왕복하여 압착하고, 압착 후 20분 및 24시간 경과시점에 12.7 mm/min의 속도로 측정하였다. 각 샘플당 3회의 실험 평균치를 결과로 하였다.

점착테이프의 단면 모폴로지 측정. 양면 점착테이프의 단면 모폴로지를 측정하기 위해 각각의 샘플 양면에 두께 50~130 μm의 PET 필름 또는 폴리에틸렌(PE) 필름을 붙인 후 미세 컷터를 이용하여 절단시켰다. 절단된 시편은 SEM mount에 붙여 진공하에 Au를 증착시켜 준비하였고, 준비된 시료는 SEC Desktop Mini SEM(SNE-3200M, Dream Co.)을 이용하여 배율 50X로 관찰하였다.

결과 및 토론

두께 및 SiO₂ 유무에 따른 접착력 변화. 자동차, 건축 및 산업용으로 적용되는 UV 경화형 양면 점착테이프는 일반적으로 초기 180° 박리강도 값이 3000 gf/25 mm 이상, 전단점착강도 값이 6 kgf/cm² 이상인 것을 사용한다.¹³ 그 이유는 접합하고자 하는 피착물에 양면 점착테이프를 붙인 후 일정하중을 가했을 시 탈착되지 않아야 하는데 UV 경화에 의해 제조된 아크릴계 양면 점착테이프는 이러한 물성 구현이 가능하다. 본 연구는 2-EHA/AAC 조성이 90/10인 아크릴계 양면 점착테이프를 두께별로 준비하여 접착력을 고찰하였고 또한 무기물 충전제 입자(SiO₂, S-4) 8 phr를 혼합하여 혼합하지 않은 것과 비교하였다. Figure 1은 양면 점착테이프의 두께에 따른 180° 박리강도와 전단점착강도를 나타낸 것이다. 사용한 피착재는 표면을 연마한 SUS이며 또한 접착시간에 대한 영향을 줄이고자 초기 20분에 측정하였다.

일반적으로 점착테이프의 두께가 증가하거나 피착재에 장시간 붙인 후 접착력을 측정하면 접착강도가 증가하는 것으로 알려져 있다.¹³ 본 연구는 초기 20분 후 측정한 결과로 비교적 짧은 젖음시간에 대한 것으로 시간에 따른 영향을 배제하고자 하였다. Figure 1(a)를 보면 점착테이프의 두께 증가

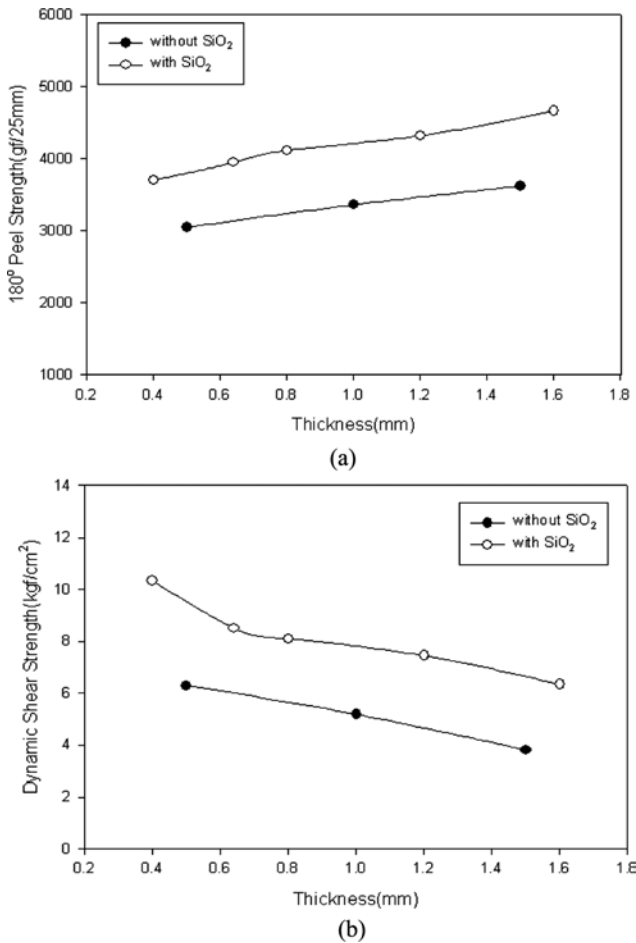


Figure 1. Effects of thickness of tape for with (SiO₂ content, 8 phr) or without SiO₂ in tape: (a) 180° peel strength; (b) Dynamic shear strength.

에 따라 180° 박리강도 값이 증가하였다. 일반적으로 무기물 충전제를 혼합하면 고분자 사슬과 작용하여 높은 물성을 발현하는 것으로 알려져 있다.¹⁵⁻¹⁷ 0.5 T(500 μm)의 경우 무기물 충전제를 혼합하지 않으면 박리강도가 약 3000 gf/25 mm 정도이며 충전제를 혼합하면 그 이상으로 높아졌으며 두께에 따라 충전제를 혼합하지 않았을 때보다 전체적으로 높은 값을 보여주었다. 충전제 SiO₂를 사용하지 않으면 양면 점착테이프의 밀도가 약 1 g/cm³인데 충전제를 혼합하면 그보다 밀도가 낮아지게 된다. 밀도가 낮아지면 일반적으로 아크릴 고분자 사슬의 유동성이 줄어들어 요철이 있는 피착재 표면에 부착성이 낮아지게 된다. 그러나 Figure 1(a)를 보면 밀도가 낮아졌음에도 불구하고 피착재 표면에 붙는 점착특성이 더 증가한 것은 사용한 무기물 충전제 SiO₂가 속이 빈 것이므로 피착재의 요철 사이에 아크릴 고분자 사슬의 유동성을 증가시켜 점착력이 증가한 것으로 생각되며 이러한 특성은 충전제의 크기가 클수록, 적용 온도가 높을수록, 적용 시간이 경과

할수록 속이 비어있는 공기층의 유동성이 증가하여 더 높은 표면 점착력이 발현될 것으로 기대된다.^{18,19} Figure 1(b)의 전단점착강도는 두께 증가에 따라 180° 박리강도의 거동과 반대로 줄어들었다. 전단점착강도는 표면특성보다 내부구조에 따른 고분자사슬 간의 응집력과 관계된 것으로 점착테이프의 두께가 두꺼울수록 낮아지는 것이 일반적이다.^{13,14} 충전제 SiO₂ 유무에 따른 전단점착강도의 결과를 비교해 보면 충전제를 혼합한 것이 더 높은 전단점착강도를 보여주는데 이것은 SiO₂가 아크릴 고분자 사슬과 상호작용하여 semi-rigid한 네트워크 구조를 이뤄 전단을 가했을 때 높은 저항력을 보인 것이다.¹⁴

SiO₂ 종류 및 두께별 점착력 변화. Table 3은 2-EHA/AAC=90/10인 조성으로 UV 중합한 시럽에 종류가 다른 무기물 충전제 SiO₂ 입자를 각각 혼합하여 0.8 T 및 0.25 T의 두께로 각각 제조한 양면 점착테이프의 180° 박리강도와 전단점착강도를 나타낸 것이다. 이때 혼합한 무기물 충전제는 6 phr로 하였다. 0.8 T의 결과를 보면 입자의 true density가 가장 높은 S-3를 사용하여 제조한 양면 점착테이프의 180° 박리강도 값이 가장 낮게 나타났으며 true density가 0.15 g/cm³인 S-1과 S-5는 거의 비슷하며 0.125 g/cm³인 S-4의 값이 이들보다 약간 높은 것을 알 수 있다. 전단점착강도도 마찬가지로 true density가 가장 높은 S-3가 가장 낮게 나타났다. 이것은 S-3가 S-2보다 입자크기가 더 작으면서 격벽이 두꺼워 밀도가 높은 것으로써 상대적으로 빈 공기층이 적어서 박리강도가 낮아진 것이며, 전단점착강도의 경우 입자크기가 작으면 표면적이 줄어들어 UV 경화에 따른 고분자 사슬과의 네트워크 형성 시 상호 작용력이 줄어든 것으로 생각된다.

최근들어 전기전자 및 디스플레이 부품 및 접합 공정의 경박단소화에 의해 기존에 사용하던 볼트나 리벳을 이용한 부품접합이 양면 점착테이프를 사용하는 공정으로 대체되고 있다.^{2,3} 따라서 높은 점착력 및 신뢰성을 요구하는 박막형 양면 점착테이프의 수요가 증가하고 있다. Table 3을 보면 0.8 T에서 0.25T로 두께 감소에 따라 180° 박리강도 값이 증가하였

Table 3. Effects of Various Inorganic Fillers in Tape at 20 min of Wetting Time and 6 phr of Filler Content

Sample code	Tape thickness			
	0.8 T		0.25 T	
	180° peel strength (gf/25 mm)	Dynamic shear strength (kgf/cm ²)	180° peel strength (gf/25 mm)	Dynamic shear strength (kgf/cm ²)
S-1	2615	5.44	2806	7.41
S-2	2357	5.32	2487	7.60
S-3	2006	4.60	2203	5.87
S-4	2613	4.74	3018	8.04
S-5	2574	5.24	3217	9.01
S-6	2032	4.71	2345	8.11

다. 이것은 Figure 1(a)에서 두께증가에 따라 박리강도가 비례하여 증가하는 거동과 반대되는 결과이다. 무기물 충전제 S-4의 경우, 충전제 사용량에 따라 이러한 거동 차이를 보이는 것은 최대 접착력을 보이는 충전제 함량이 존재하기 때문임을 본 연구자에 의해 보고한 바 있다.¹⁴ 또한 본 연구에서 검토한 시럽 조성에서 무기물 충전제 함량이 기존보다 더 낮은 6 phr임에도 불구하고 초기접착력이 높아진 것은 점착테이프의 두께가 얇아 테이프 표면에 비교적 큰 크기의 SiO₂ 입자가 두꺼운 테이프보다 많이 분포하여 초기접착력을 증가시킨 것으로 보이며 큰 입자가 많이 포함된 S-4, S-5 및 S-6가 더 높은 물성을 보이는 것이 이를 설명해준다.

무기물 충전제 SiO₂ 입자의 크기 및 true density에 따른 초기 박리강도 값을 비교해보면 0.8 T와 마찬가지로 S-3이 가장 낮았으며 true density가 0.15 g/cm³인 S-5가 가장 높은 초기 박리강도를 보였다. S-5는 S-1과 동일한 true density이나 최대 입자 크기가 더 크고 입자의 분포가 더 넓은 것이다. 따라서 0.25 T의 경우 박리강도는 큰 입자가 포함된 무기물 충전제를 사용하면 더 높음을 알 수 있었다. 전단접착강도는 두께가 감소함에 따라 충전제 입자 종류와 관계없이 전체적으로 증가하였다. 이것은 두께가 감소하면 전단접착강도가 증가하는 일반적인 거동으로 Figure 1(b)과 동일한 결과이다.¹³ 충전제 입자의 true density가 0.125인 S-4는 가장 낮은 밀도임에도 불구하고 약 8 kgf/cm²의 전단접착강도 값을 보였다. 이것은 S-1보다 밀도가 낮지만 큰 입자가 포함된 SiO₂를 사용함으로 양면 점착테이프의 내부응집력이 증가하여 나타난 결과로 생각되며 S-5 및 S-6도 S-4와 동일한 높은 전단접착강도를 보여 주고 있다.

Table 4는 0.8 T와 0.25 T의 양면 점착테이프를 SUS에 붙이고 24시간 경과 후에 측정한 180° 박리강도와 전단접착강도의 결과를 정리한 것이다. 0.8 T의 경우 Table 3의 초기 20분 적용시간과 비교해보면 피착재에 붙인 시간이 증가함에 따라 180° 박리강도 값이 전체적으로 증가하였으며 S-5가 가

장 높은 박리강도를 보였다. 0.25 T의 결과를 보면 0.8 T보다 더 큰 증가를 보였으며 무기물 충전제 입자의 크기가 클수록 높은 박리강도를 보여 주었다. 이것은 양면 점착테이프의 두께가 얇을수록 입자의 밀도보다 입자 크기가 더 큰 영향을 미친 결과이다.

전단접착강도는 적용시간이 증가함에 따라 증가하였으며 0.25 T가 0.8 T보다 더 높은 값을 보였다. 0.8 T의 경우 전체적으로 약 7 kgf/cm² 정도의 물성을 보였으며 초기시간 20분보다 약 2 kgf/cm² 높은 값을 보여주는 반면 0.25 T의 결과를 보면 최소 2.5 kgf/cm² 이상의 증가를 보여주고 있다. 이것은 점착테이프의 두께가 두꺼우면 충전제 입자 크기가 크더라도 전단접착강도에는 미미한 영향을 주나(S-4~S-6) 두께가 얇으면 충전제 입자에 의한 응집력이 커져서 전단접착력을 증가시킨 요인으로 생각된다. 따라서 무기물 충전제 입자의 종류에 따른 24시간 경과 후 박리강도와 전단접착강도를 고찰한 결과 큰 입자가 미량 포함될수록, 점착테이프의 두께가 낮을수록 박리강도의 증가보다 전단접착강도의 증가가 더 큼을 알 수 있었다.

SiO₂ 종류 및 함량에 따른 밀도 변화. Figure 2는 SiO₂ 종류 및 함량에 따른 양면 점착테이프의 밀도 변화를 도시한 것이다. SiO₂를 첨가하지 않은 양면 점착테이프의 밀도는 약 1 g/cm³인데 전체적으로 입자 함량 증가에 따라 양면 점착테이프의 밀도가 낮아지는 것을 알 수 있으며 이것은 SiO₂가 속이 비어있는 충전제이므로 혼합한 양만큼 밀도가 줄어드는 것이다.¹⁴ 입자 종류에 따른 비교를 보면 입자의 true density가 가장 큰 S-3의 경우(0.6 g/cm³) SiO₂ 함량 증가에 따라 미미한 테이프의 밀도 감소를 보였으며, true density가 0.15 g/cm³인 S-1이 가장 낮은 테이프 밀도 값을 보였다. S-5는 S-1과 동일한 true density임에도 불구하고 크기가 큰 입자가 존재하므로 S-1보다 약간 높게 나타났다. 한편, S-4(0.125 g/cm³)

Table 4. Effects of Various Inorganic Fillers in Tape at 24 hr of Wetting Time and 6 phr of Filler Content

Sample code	Tape thickness			
	0.8 T		0.25 T	
	180° peel strength (gf/25 mm)	Dynamic shear strength (kgf/cm ²)	180° peel strength (gf/25 mm)	Dynamic shear strength (kgf/cm ²)
S-1	3610	7.30	4511	11.95
S-2	3720	6.62	4403	10.00
S-3	3312	6.67	4361	9.72
S-4	3468	7.32	4604	12.38
S-5	4126	7.19	5100	14.57
S-6	3733	7.12	4972	11.63

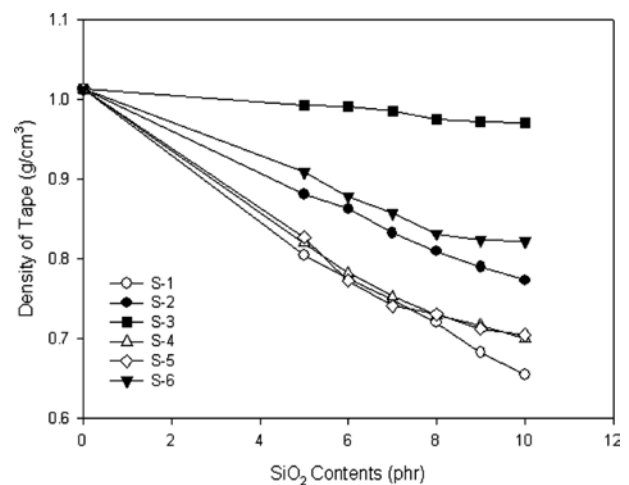


Figure 2. Density of tapes for various SiO₂ content.

는 가장 낮은 true density인데 S-1보다 입자 함량에 따라 전체적으로 양면테이프의 밀도가 높은 것은 S-5와 마찬가지로 크기가 큰 입자가 많이 포함되어 입자 크기 분포가 넓으므로 동일 혼합양 기준으로 볼 때 속이 빈 충전제 비율이 높아져서 나타난 것으로 생각된다. 이것은 속이 빈 크기가 큰 입자

가 더 두꺼운 격벽을 가지므로 상대적으로 크기가 작고 균일한 입자보다 무거워서 양면 점착테이프의 밀도가 약간 높아진 것이다.

SiO₂ 입자별 양면 점착테이프의 단면구조. Figure 3은 SiO₂ 입자 종류별 6 phr 적용한 두께 0.8 T 양면 점착테이프의 단면구조를 나타낸 것이다. S-1, S-2 및 S-3은 최대 입자 크기가 100 μm 이하로 균일한 분포를 보였으며 S-4 및 S-5는 큰 입자의 무기물 충전제가 포함된 것을 확인할 수 있었으며 약 200 μm 에 근접하는 입자가 존재하였다. S-6은 Table 1에 나타난 것과 같이 S-1과 입자 크기 및 분포가 거의 유사하나 true density가 더 높다. SEM 사진을 보면 실제 입자크기가 S-1보다 더 작고 균일함을 확인할 수 있었다. 한편, S-4 및 S-5의 경우 약 200 μm 크기의 입자가 존재하는데 이러한 큰 입자가 존재하면 0.1 T 이하의 박막형 양면 점착테이프 제조가 어렵다. 특히 모바일 및 디스플레이 부품 접합에 박막형 양면 점착테이프 적용을 위해서는 균일한 두께를 필요로 하므로 두께가 얇을수록 무기물 충전제 크기가 작은 입자를 사용해야 한다.

SiO₂ 함량별 180° 박리강도 변화. UV 경화형 양면 점착테이프의 연구에서 무기물 충전제를 포함한 0.4 T 이상의 두께에 대하여 연구 보고된 바 있으나^{13,14} 그 이하의 두께는 보고된 바 없다. 따라서 본 연구는 0.4 T보다 얇은 0.25 T 및 0.1 T의 두께에 무기물 충전제를 혼합하여 종류 및 함량에 따른 영향을 고찰하고자 하였다. Figure 4는 양면 점착테이프 두께 0.25 T의 충전제 SiO₂ 입자 종류 및 함량에 따른 초기 및 후기 적용시간에 따른 180° 박리강도 결과를 도시한 것이다. 입자의 함량 증가에 따라 초기 박리강도는 미미한 변화를 보여주고 있다. 입자 종류에 따른 변화를 보면 S-4 및 S-5는 함량 증가에 따라 초기 박리강도가 감소하나 이들을 제

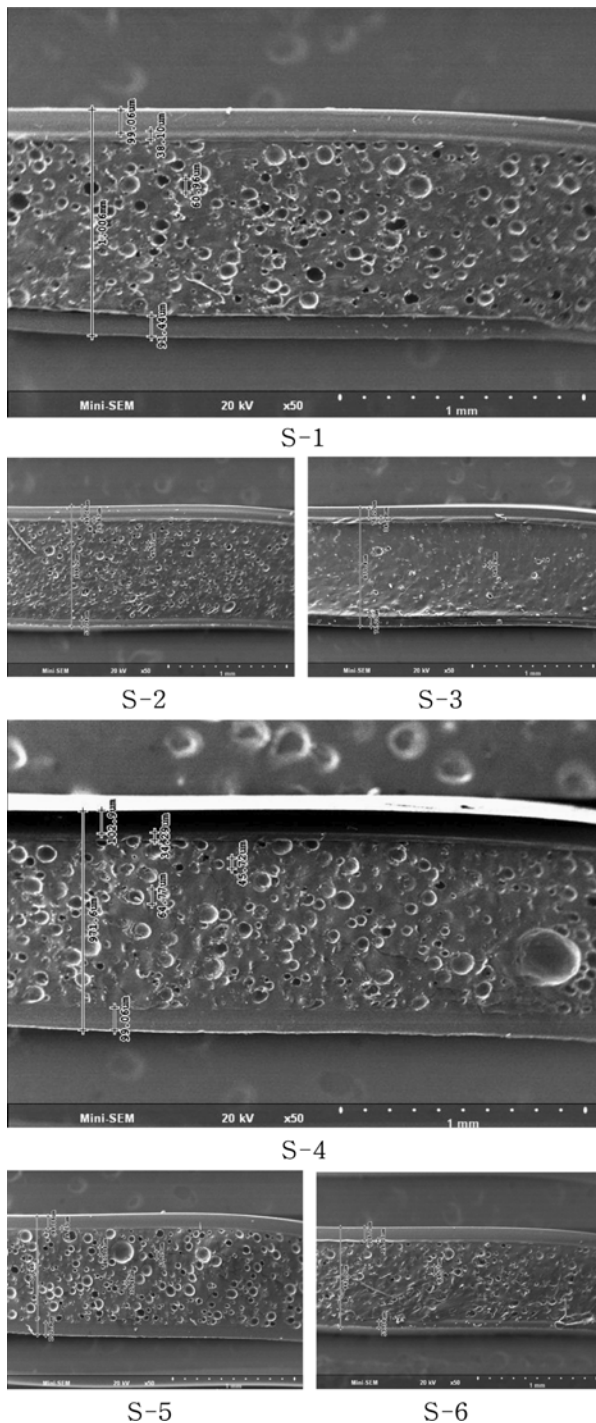


Figure 3. Cross sectional morphology of tapes for various SiO₂ content.

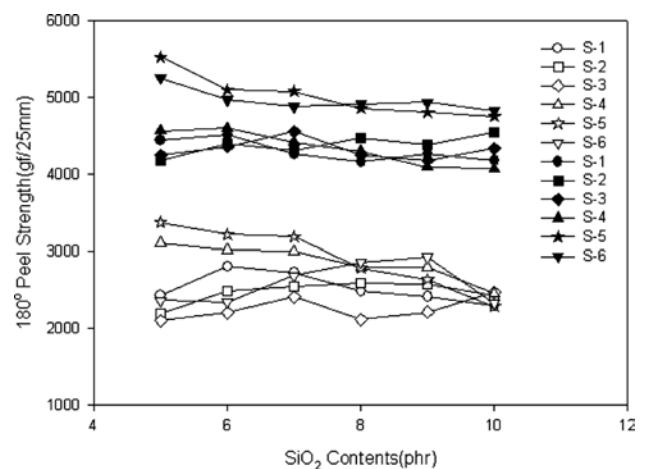


Figure 4. Effects of various inorganic fillers on peel strength at 0.25 T for filler contents: Open symbol represents 20 min of wetting time and closed symbol represents 24 hr of wetting time.

외한 충전제들은 함량 증가에 따라 S-1은 6 phr, S-2는 8 phr, S-3은 7 phr, S-6은 9 phr에서 최대 초기 박리강도 값을 보이며 다시 감소하는 거동을 보이고 있다. 이것은 입자 크기가 100 μm 이하를 사용한 양면 점착테이프에서 공통적으로 나타난 결과로 최대 박리강도 값을 보이는 충전제 함량 이전까지는 무기물 충전제 양이 부족한 것으로 보이며 입자의 농도가 증가함에 따라 포화되어 물성의 최대값을 보이게 된 것이다. 반면에, 100 μm 이상의 입자가 포함된 S-4 및 S-5는 더 낮은 농도인 5 phr에서 최대 박리강도 값을 보인 후 점차 감소하였는데 이것은 큰 입자들로 인해 상대적으로 낮은 농도에서 포화된 것으로 판단된다. 포화농도보다 입자를 더 추가하면 테이프 내에 과량으로 존재하게 되어 UV 경화 시 접착력 및 내부 응집강도를 저하시키는 요인으로 작용함을 보고한 바 있다.¹⁴ 시간 경과에 따른 24시간 후의 박리강도는 초기보다 더욱 높아졌으며 이것은 피착재에 테이프의 적용시간이 증가할수록 높은 접착력을 발현시킨 결과이다.

Figure 5는 두께가 더 얇은 0.1 T 양면 점착테이프의 초기 및 후기 박리강도를 나타낸 것이다. 본 연구에서 검토한 무기물 충전제 S-4, S-5 및 S-6은 100 μm 이상 크기의 입자가 포함되므로 0.25 T의 양면 점착테이프 제조에는 문제가 없으나 0.1 T 이하의 적용할 수가 없다. 따라서 0.1 T의 두께는 최대 입자크기가 100 μm 미만인 S-1, S-2 및 S-3를 이용하여 고찰하였다. 입자 함량에 따른 초기 박리강도를 보면 S-1은 6 phr, S-2는 7 phr 및 S-3은 7 phr에서 각각 최대값을 보여주고 있으며 Figure 4(a)와 동일한 거동을 보였다. 이러한 거동은 후기 박리강도에서 더욱 두드러져 S-1은 5 phr, S-2는 6 phr, 및 S-3은 6 phr에서 최대 후기 박리강도 값을 보였으며 입자의 포화농도가 초기보다 더 낮아짐을 알 수 있었다. 특히 S-2의 경우 초기시간보다 더 낮은 농도에서 최대 박리강도 값을 보인 것은 무기물 충전제의 크기보다 입자의 true

density가 높아 시간경과에 따라 더 높은 물성을 보인 것으로 생각된다.

SiO₂ 함량별 전단접착강도 변화. Figure 6은 0.25T의 초기 및 후기 전단접착강도 변화를 도시한 것이다. 입자 함량 증가에 따른 초기 전단접착강도는 미미한 변화 거동을 보여준다. 입자 종류에 따른 거동을 보면 S-4 및 S-5의 전단접착강도가 충전제 입자 농도에 따라 기타의 충전제보다 전체적으로 약간 높게 나타났다. 또한 박리강도의 거동과 마찬가지로 충전제 입자 농도에 따른 최대 전단접착강도를 보이는 포화농도가 S-1은 7 phr, S-2는 6 phr, S-3은 7 phr, S-4는 7 phr, S-5는 5 phr, S-6은 6 phr로 각각 나타났으며 특이한 것은 7 phr 이하에서 최대 값을 보인 후 감소하다가 9 phr에서 다시 증가하는 변화를 보였다. S-5의 포화농도 6 phr에서 최대 값을 보인 것을 제외한 나머지 입자 종류에서 최대 전단접착강도 값을 보인 포화농도가 공통적으로 7 phr에서 나타났으며 충전제 입자 농도가 더 증가함에 따라 급격한 저하를 보였다. 이러한 변화는 과량의 입자가 아크릴 고분자 사슬간의 내부 응집력을 저하시키는 요인이 되어 후기 전단접착강도에서 더욱 두드러지게 나타났다. 최소 전단접착강도 값을 보이고 다시 증가하는 것은 충전제 간 거리가 가까워져 고분자 사슬에 의한 점착력보다 충전제에 의한 내부 응집력이 보강된 것으로 판단되며 과량의 충전제를 사용하면 박리강도보다 전단접착강도에 더 큰 영향이 있음을 알 수 있었다. 동일한 true density(0.15 g/cm³)인 무기물 충전제의 입자 크기에 따른 변화거동을 비교하기 위해 S-1과 S-5를 보면 입자 크기가 작은 S-1의 전단접착강도가 더 높게 나타났으며 true density가 0.2 g/cm³ 이상인 S-2, S-3 및 S-6의 경우 입자의 크기가 100 μm 이하인 것들이 공통적으로 낮게 나타났다. 따라서 무기물 충전제 입자의 크기가 작을수록, true density가 높을수록 전단접착강도가 낮아짐을 알 수 있었다.

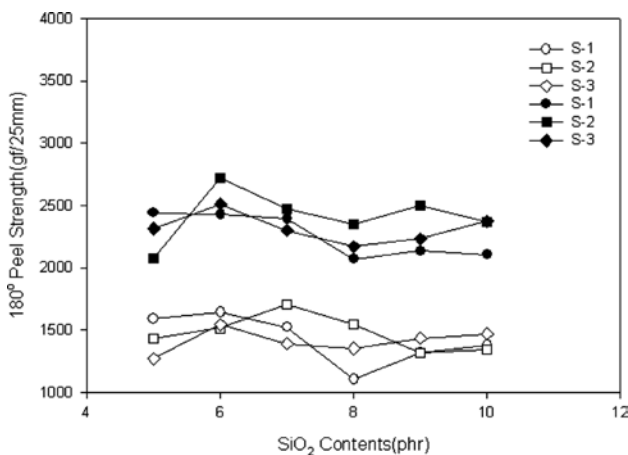


Figure 5. Effects of various inorganic fillers on peel strength at 0.1 T for filler contents: Open symbol represents 20 min of wetting time and closed symbol represents 24 hr of wetting time.

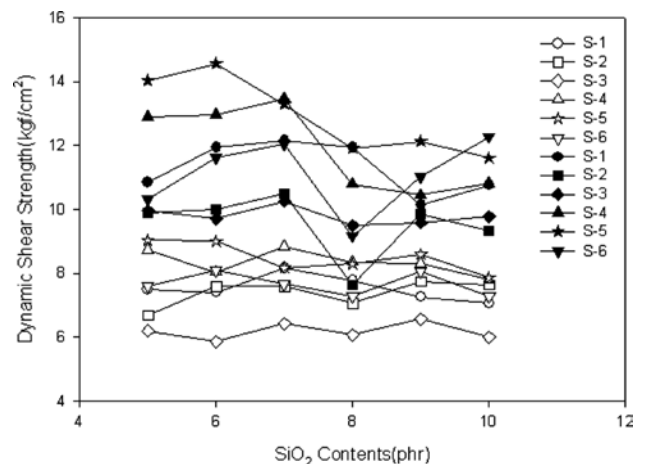


Figure 6. Effects of various inorganic fillers on dynamic shear strength at 0.25 T for filler contents: Open symbol represents 20 min of wetting time and closed symbol represents 24 hr of wetting time.

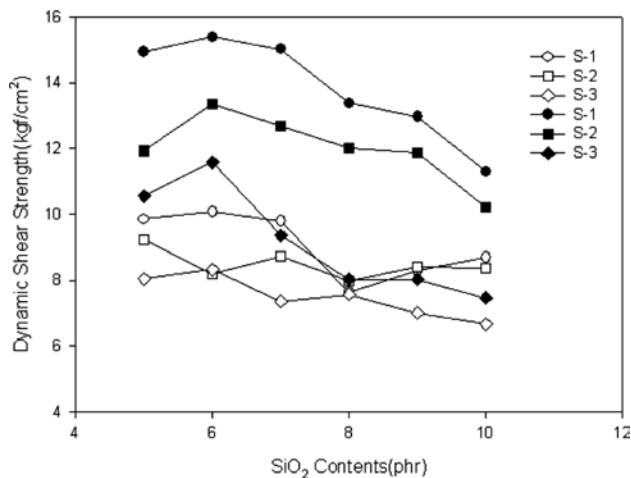
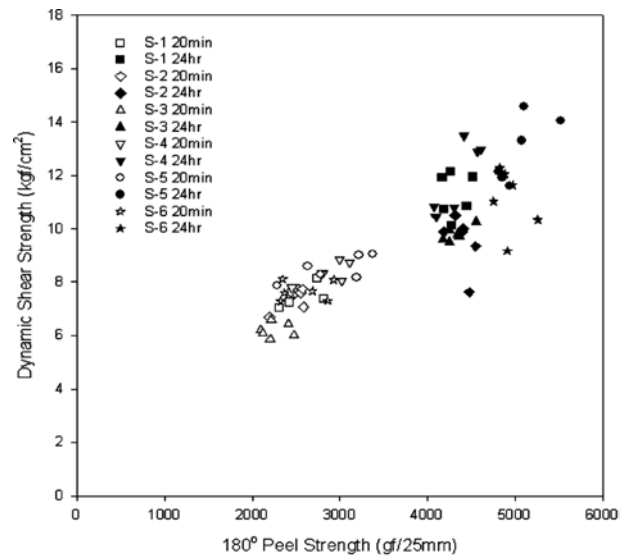


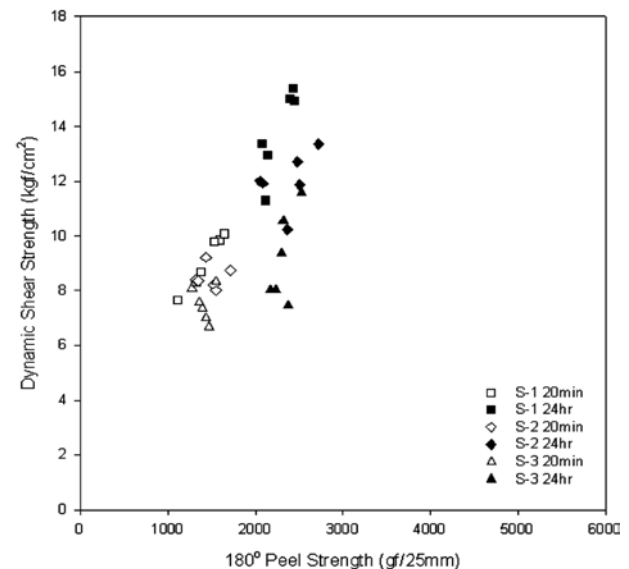
Figure 7. Effects of various inorganic fillers on dynamic shear strength at 0.1 T for filler contents: Open symbol represents 20 min of wetting time and closed symbol represents 24 hr of wetting time.

Figure 7은 0.1 T의 초기 및 후기 전단접착강도를 나타낸 것이다. 무기물 충전제 함량에 따른 물성의 감소는 Figure 5에 보인 박리강도 감소와 유사한 거동을 보이거나 무기물 충전제 입자의 종류에 따라, 적용시간 증가에 따라 전단접착강도의 변화가 더 큼을 알 수 있었다. 특히 true density가 낮을수록 시간 경과에 따른 후기 전단접착강도 값이 높으며 변화가 크게 나타났다. S-3의 초기시간을 제외한 기타의 충전제 입자의 경우 피착재 적용시간 및 무기물 충전제 함량 증가에 따라 6 phr에서 최대값을 보인 후 감소하는 거동을 보였다. Figure 6에서 보인 0.25 T의 변화거동과는 다르게 0.1 T에서는 초기 적용시간에 8 phr 함량에서 최소 값을 보인 후 미미한 전단접착강도의 증가를 보였으며 적용시간 증가에 따라 S-3을 제외한 S-1 및 S-2를 사용한 양면 점착테이프의 전단접착강도 값이 10 kgf/cm² 이상으로 안정적인 변화 거동을 보여 주었다.

180° 박리강도와 전단접착강도와 상관관계. Figure 8은 본 연구에서 검토한 무기물 충전제 입자 함량 및 종류에 따른 180° 박리강도에 대한 전단접착강도를 도식한 것이다. 본 연구자에 의해 0.8 T의 두께에서 이미 보고하였듯이¹⁴ 2-EHA/AAC를 사용한 UV 경화형 아크릴 점착테이프의 180° 박리강도와 전단접착강도는 비례관계임을 보여 주었다. 기존 연구는 적용시간에 따라 후기 박리강도가 높지 않은 반면¹⁴ 본 연구에서 검토한 0.25 T 이하 박막형의 양면 점착테이프에서는 높은 전단접착강도를 보였을 뿐만아니라 180° 박리강도 값도 높게 나타났다. 24시간 후의 180° 박리강도와 전단접착강도 값을 보면 180° 박리강도는 약 4000~5500 gf/25 mm에서 1500 gf/25 mm의 차이를 보여주며 전단접착강도는 약 7~15 kgf/cm²에서 8 kgf/cm²의 차이를 보이고 있다. 이것은 초기 20분에서 180° 박리강도 2000~3500 gf/25 mm에서 1500 gf/



(a)



(b)

Figure 8. Relationship of peel strength and dynamic shear strength on various filler and SiO₂ contents for 20 min and 24 hr wetting times: (a) 0.25 T; (b) 0.1 T.

25 mm로 동일한 변화임에 반해 초기 전단접착강도 5.5~9 kgf/cm²에서 3.5 kgf/cm² 변화보다 월등히 큰 것이다. 이 결과로부터 적용시간이 증가하면 180° 박리강도보다 전단접착강도에 무기물 충전제의 영향이 더 큼을 알 수 있었다. 이러한 거동은 양면 점착테이프의 두께가 0.1 T로 더 낮은 Figure 8(b)를 보면 더욱 두드러졌다. 따라서 본 연구로부터 무기물 충전제 SiO₂를 사용하여 물성을 고찰한 결과 양면 점착테이프의 두께가 낮을수록 충전제의 종류 및 함량에 따라 박리강도보다 전단접착강도에 더 큰 영향을 미침을 알 수 있었고 박

막형의 양면 접착테이프의 이러한 물성고찰을 통해 전기전자 재료의 부품접합에 적용 가능할 것으로 생각된다.

결 론

본 연구는 UV 조사에 의해 공중합시킨 아크릴계 시럽에 다양한 무기물 충전제 종류 및 함량별로 혼합하여 2단계 UV 경화에 의해 양면 접착테이프를 제조하고 180° 박리강도와 전단접착강도를 측정하여 박막형 준구조용 부품 접합에의 적용가능성을 고찰하고자 한 것이다. 무기물 충전제 8 phr를 혼합하여 제조한 양면 접착테이프의 두께별, 충전제 종류별로 검토한 결과 두께가 증가할수록 박리강도는 증가하였고, 전단접착강도는 감소하였으며, 충전제의 사용으로 인해 더 높은 물성이 발현되었다. 무기물 충전제 종류에 따른 검토 결과 100 μm 이상의 입자 크기가 미량 포함된 양면 접착테이프의 초기 박리강도가 가장 높았으며 전단접착강도에는 큰 영향이 없었다. 반면에, 무기물 충전제 6 phr를 사용한 0.25 T에서는 0.8 T와 다른 거동을 보였으며 무기물 충전제 입자가 클수록 전단접착강도에 더 큰 영향을 주었다. 무기물 충전제 함량 및 종류에 따른 양면 접착테이프의 밀도는 함량증가에 따라 감소하였으며 입자의 true density가 낮을수록 낮아졌다. 두께 0.8 T에 무기물 충전제 6 phr를 혼합한 양면 접착테이프의 SEM 이미지를 통해 무기물 충전제 종류에 따른 입자 크기 및 분포가 물성에 영향이 있음을 알 수 있었다. 무기물 충전제 함량에 따라 박리강도 및 전단접착강도의 최대값을 보이는 입자의 포화농도가 존재하였고 적용시간 증가에 따라 최대 물성 값을 보이는 함량이 낮은 쪽으로 이동하였으며 이것으로부터 무기물 충전제 입자와 아크릴 고분자 사슬과의 상호작용력이 입자 함량에 영향이 있음을 알게 되었다. 180° 박리강도와 전단접착강도와 상관계로부터 무기물 충전제의 함량, 충전제의 크기 및 분포, true density는 피착제와의 표면 접착력과 관계되는 박리강도보다 내부 응집력과 관계되는 전단접착강도에 더 큰 영향을 주었으며 테이프의 두께가 더 얇은 0.1 T에서 이러한 특성이 더욱 두드러졌다. 따라서 본 연구 결과로부터 준구조용 박막형 양면 접착테이프를 제조하기 위해서는 무기물 충전제를 선택적으로 사용해야 하며 이를 통해 높은 접착력을 필요로 하는 소재 접합에 적용 가능할 것으로 판단된다.

감사의 글: 본 연구는 경기도의 경기도지역협력연구센터 (GRRC) 사업의 일환으로 수행하였으므로 이에 감사드립니다 [GRRC단국 2011-C02].

참 고 문 헌

1. D. Satas, *Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology*, 2nd edition, Van Nostrand Reinhold, New York, 1989.
2. I. Bened, *Pressure-Sensitive Adhesive and Applications*, 2nd edition, Marcel Dekker, New York, 2004.
3. H. J. Choi, I. S. Park, and L. Jang, Korean Patent 100852887 (2008).
4. I. H. Cho, Korean Patent 1020080109275 (2008).
5. H. S. Do, S. E. Kim, and H. J. Kim, *Preparation and Characterization of UV-Crosslinkable Pressure-Sensitive Adhesives in Adhesion-Current Research and Applications*, Wiley-VCH, Weinheim(Germany), 2005.
6. H. S. Joo, Y. J. Park, H. S. Do, H. J. Kim, S. Y. Song, and K. Y. Choi, *J. Adhes. Sci. Technol.*, **21**, 5758 (2007).
7. H. S. Do, Y. J. Park, and H. J. Kim, *J. Adhes. Sci. Technol.*, **20**, 1529 (2006).
8. Z. Czech and R. Milker, *Mater. Sci.-Poland*, **23**, 1015 (2005).
9. H. S. Do, S. E. Kim, and H. J. Kim, *Adhesion-Current Research and Applications*, Wiley-VCH, Weinheim (Germany), 2005.
10. A. Pizzi and K. L. Mittal, *Adhesive Technology and Applications*, Marcel Dekker, New York, 2003.
11. Y. C. Kim and B.-H. Lee, *Journal of Adhesion and Interface*, **10**, 191 (2009).
12. ASTM D 3330-96, "Standard Test Method for Peel Adhesion of Pressure Sensitive Tape at 180° Angle", 1997.
13. J. W. Park, S. W. Lee, H. J. Kim, D. B. Won, D. B. Kim, K. S. Lee, H. S. Woo, and E. A. Kim, *J. Adhesion and Interface*, **12**, 81 (2011).
14. D. B. Kim, *Polymer(Korea)*, **37**, 184 (2013).
15. P. Tordjeman, E. Papon, and J.-J. Villenave, *J. Chem. Phys.*, **113**, 10712 (2000).
16. N. Morel, Ph. Tordjeman, J. Duwattez, and E. Papon, *J. Colloid Interf. Sci.*, **280**, 374 (2004).
17. I. M. Cho, H. G. Kim, D. H. Han, J. C. Lim, and K. E. Min, *Polymer(Korea)*, **34**, 226 (2010).
18. H. C. Son, H. G. Kim, D. H. Lee, and K. E. Min, *Polymer(Korea)*, **32**, 313 (2008).
19. J. W. Park, S. W. Lee, H. J. Kim, D. B. Won, D. B. Kim, K. S. Lee, H. S. Woo, and E. A. Kim, *J. Adhesion and Interface*, **12**, 81 (2011).