

아크릴계 하이브리드 감압성 접착제의 합성

이달호* · 양남규** · 문두경*,**†

Development and Synthesis of Hybrid Acrylic Pressure-Sensitive Adhesives

Dal Ho Lee*, Nam Gyu Yang**, Doo Kyung Moon*,**†

ABSTRACT: In this study, a hybrid pressure-sensitive adhesive (PSA) was developed by introducing an epoxy oligomer to enhance the mechanical strength and heat resistance of an acrylic-based PSA. Octyl acrylate (OA), 2-ethylhexyl methacrylate (EHMA), and butyl acrylate (BA) were each introduced as soft monomers, while hydroxyethyl methacrylate (HEMA) and glycidyl methacrylate (GMA) were fixed as functional monomers. A ternary copolymer was synthesized via free radical polymerization. FT-IR analysis confirmed the polymerization, as the characteristic C=C double bond peak near 1630 cm^{-1} was absent. Gel permeation chromatography (GPC) revealed that all samples had a polydispersity index (PDI) in the range of 2.1 to 2.2. The introduction of GMA into the polymer backbone was found to contribute to the formation of a crosslinked structure, thereby enhancing the cohesion and heat resistance of the adhesive.

초 록: 본 연구에서는 아크릴 기반 감압성 접착제(PSA)의 기계적 강도와 내열성을 향상시키기 위해 에폭시 올리고머를 도입한 하이브리드 접착제를 개발하였다. 옥틸 아크릴레이트(OA), 2-에틸헥실 메타크릴레이트(EHMA), 그리고 부틸 아크릴레이트(BA)를 soft 단량체로 각각 도입하고, 하이드록시에틸 메타크릴레이트(HEMA)와 글리시딜 메타크릴레이트(GMA)를 기능성 단량체로 고정하여 자유 라디칼 중합을 통해 3월 공중합체를 합성하였다. 중합체는 FT-IR 분석 결과 1630 cm^{-1} 부근의 이중결합(C=C) 피크가 나타나지 않아 완전히 중합된 것을 확인하였다. GPC를 통한 분자량 분석 결과 모든 시료의 분산도(PDI)는 2.1~2.2의 분포를 나타냈다. 고분자 주쇄에 GMA의 도입으로 인해 가교 구조 형성이 접착제의 응집력과 내열성을 향상시키는데 기여함을 확인하였다.

Key Words: 감압성 접착제(Pressure-sensitive adhesive), 에폭시 접착제(Epoxy adhesive), 아크릴 접착제(Acrylic adhesive), 자유 라디칼 중합(Free radical polymerization)

1. 서 론

감압성 접착제(PSA, Pressure-Sensitive Adhesive)는 열, 용제, 수분 등의 활성화 과정 없이 가벼운 압력만으로도 다양한 표면에 즉시 접착이 가능한 재료로, 포장재, 전자기기,

자동차 부품, 바이오, 의료 기기 등 다양한 산업 분야에서 광범위하게 사용되고 있다[1]. 이 중에서도 아크릴 기반 PSA는 우수한 광학적 투명성, 내후성, 노화 저항성 및 가공 용이성으로 인해 의료용 테이프, 라벨, 광학용 필름 등 고부가가치 제품에 널리 응용되고 있다[2]. 그러나 기존 아크릴

Received 23 May 2025, received in revised form 4 June 2025, accepted 18 June 2025

*Carbon-Neutral and Renewable Energy, Konkuk University

**Department of Chemical Engineering, Konkuk University

†Corresponding author (E-mail: dkmoon@konkuk.ac.kr)

PSA는 주로 선형 고분자 구조와 낮은 유리전이온도(T_g)를 갖는 소프트 단량체(예: BA, EHMA, OA)를 기반으로 하기 때문에, 기계적 강도와 열적 안정성 측면에서 한계를 갖는다. 특히 고온 환경이나 반복적인 기계적 응력이 요구되는 산업적 조건에서는 이러한 한계가 실용성을 크게 저해할 수 있다[3]. 이에 따라 PSA의 물성을 향상시키기 위한 다양한 연구가 이루어졌으며, 대표적인 접근법으로는 기능성 단량체 도입, 가교 구조 형성, 그리고 하이브리드 네트워크 구현이 제안되어 왔다[4]. 그 중에서도 아크릴 PSA에 에폭시 올리고머를 도입하여 열경화성 가교 네트워크를 형성하는 전략은 매우 유망하다. 에폭시 올리고머는 우수한 기계적 강도, 내열성, 내화학성을 갖는 대표적인 열경화성 수지로, 경화 반응을 통해 삼차원 가교 구조를 형성함으로써 접착제의 응집력(cohesion)과 내구성을 향상시킬 수 있다[5]. 이를 위해 아크릴 공중합체 내에 에폭시기를 갖는 글리시딜 메타크릴레이트(GMA)를 도입하고, 하이드록시기를 갖는 HEMA를 함께 사용하면, 에폭시 올리고머와의 상호 반응성 및 기질에 대한 접착 특성이 동시에 향상될 수 있다.

기존 문헌에서는 soft/hard 단량체의 조성 변화가 접착 특성에 미치는 영향에 대한 연구는 일부 수행되었으나, OA, EHMA, BA와 같은 소프트 단량체의 종류에 따른 아크릴-에폭시 하이브리드 시스템의 체계적인 비교 연구는 상대적으로 부족하다.[7] 또한 기존 연구의 대부분은 접착력이나 응집력 중 한 가지 특성에만 초점을 맞추어 고분자 구조-물성 상관관계를 포괄적으로 분석한 사례는 드물다.

이에 본 연구에서는 HEMA와 GMA를 기능성 단량체로 고정하고, 서로 다른 세 종류의 soft 단량체(EHMA, OA, BA)를 주 단량체로 하여 자유 라디칼 중합법으로 3원 공중합체를 합성한 후, 에폭시 올리고머(KDSF-180)와의 가교 반응을 통해 하이브리드 PSA를 제조하였다. 제조된 시럽은 FT-IR, GPC, 접도 분석을 통해 특성 분석을 수행하였으며, 분자량, 관능기 도입 정도 및 접착 특성에 대한 비교 분석을 통해 고성능 PSA 설계를 위한 기초 자료를 제시하고자 한다.

2. 실험

2.1 시약

단량체인 2-ethylhexyl methacrylate(EHMA), octyl acrylate(OA)는 Tokyo chemical Industry(Japan)에서 구입하였다. Butyl acrylate(BA), glycidyl methacrylate(GMA)는 DAEJUNG (KOREA)에서 구입하였다. 2-hydroxyethyl methacrylate(HEMA)는 SAMCHUN(KOREA)에서 구입하여 사용하였다. 단량체들의 화학구조는 Fig. 1에 나타내었다. 개시제로 사용된 benzoyl peroxide는 Alfa aesar를 통해 구입하여 사용하였다. 실험에 사용된 epoxy올리고머는 국도화학의 KDSF-180을 구매하여 사용하였다.

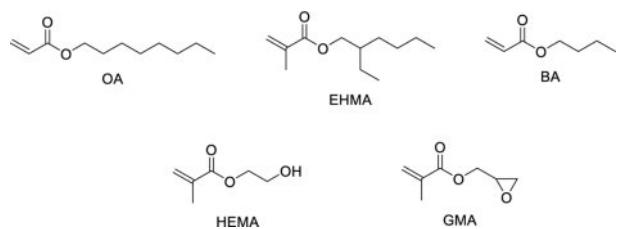


Fig. 1. Chemical structures of the monomers

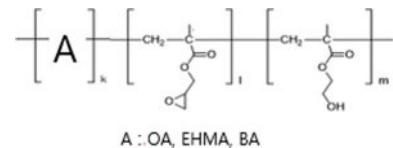


Fig. 2. Structure of the polymer

2.2 중합 및 조건

Scheme에서와 같이 접착력과 유연성을 제공하는 soft 단량체와 hard 모니터인 HEMA와 에폭시기를 가진 GMA를 각각 15:4:1 wt%으로 혼합하여 중합체를 제조하였다.

3. 결과

일반적으로 접착제에 사용되는 단량체는 soft 단량체, hard 단량체, functional 단량체와 같이 세 가지로 나뉜다. soft 단량체는 접착제의 흐름성, 접도 등에 영향을 주며, hard 단량체는 접착제의 응집력을 증가시킨다. 본 실험에서는 아크릴 고분자에서 많이 쓰이는 soft 단량체인 OA, EHMA, BA의 조성에 따른 접착특성을 알아보기 위해 HEMA, GMA를 고정시키고 OA, EHMA, BA를 각각 주 단량체로 사용하여 자유 라디칼 중합으로 시럽을 제조한 후 분자량을 측정하여 Table 1에 나타내었다[8].

Table 1에서 나타낸 것과 같이 분자량은 soft 단량체가 OA > BA > EHMA 순으로 나타났다. 이때 분자량 분포(Mw/Mn)는 2.1~2.2로 나타났다. 이는 분자량 크기에 관계없이 대부분 균일한 분포를 나타내었다.

합성된 중합체의 FT-IR spectrum을 Fig. 2에 나타내었다. FT-IR 스펙트럼 분석 결과, 모든 시료에서 3500-3000 cm⁻¹ 부근의 하이드록시기 피크와 1730 cm⁻¹ 부근의 에스터 카르보닐 피크가 확인되었다. 또한 1630 cm⁻¹ 부근의 이중결합(C=C) 피크가 나타나지 않아, 단량체의 완전 중합이 이루어졌음

Table 1. Molecular weight of the polymers

Soft monomer	Mn	Mw	PDI
OA	50,955	108,401	2.12
EHMA	35,775	78,362	2.19
BA	49,844	106,968	2.15

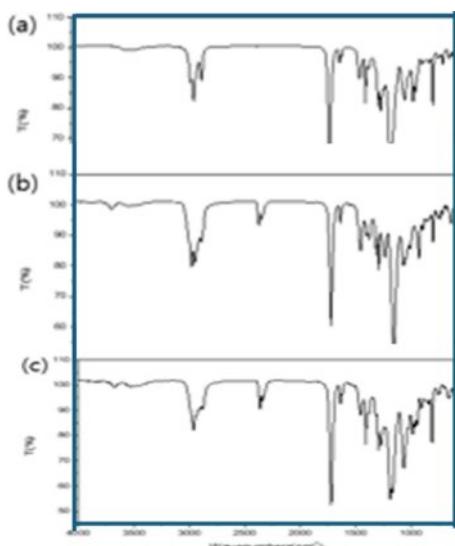


Fig. 3. FT-IR spectra of NCA polymers containing soft monomers {(a) OA, (b) EHMA, (c) BA} incorporated into main chain A

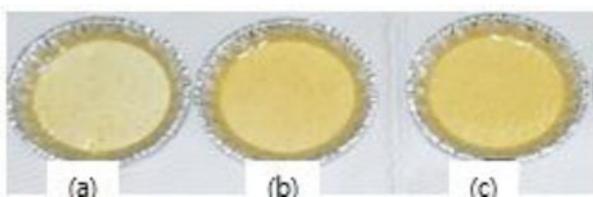


Fig. 4. Thermally Cured Pressure-Sensitive Adhesive Formed by Blending Epoxy Oligomer (KDSF-180) with a Polymer Containing Soft Monomers {(a) OA, (b) EHMA, (c) BA} at 160 °C

을 확인하였다. 이는 자유 라디칼중합을 통해 제조된 아크릴 기반 공중합체에 soft monomer가 잘 도입된 것을 확인 할 수 있다. 상기 합성된 고분자 용액에 에폭시 올리고머 (KDSF-180)을 첨가하고, 열처리를 진행하였다. 열처리 조건에 따른 가교 반응을 진행하여 hybrid PSA 필름을 제작 하였다. 이때 가교된 hybrid PSA의 접착특성이 가교가 진행되지 않고 제작된 PSA에 비해 우수한 응집력과 내열성을 보이는 것을 확인하였다.

특히, GMA가 도입된 Film의 경우 구조적 안정성이 우수한 것으로 나타났다. 이는 고분자 주쇄에 도입된 GMA가 에폭시 올리고머와의 네트워크 형성으로 인한 결과로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 GMA 및 HEMA를 각각 주단량체로 사용

하고, soft 단량체로 OA, EHMA, BA를 도입하여 아크릴계 공중합체를 합성한 후, 에폭시 올리고머와의 가교 반응을 통해 하이브리드 감압성 접착제를 제조하였다. GPC 및 FT-IR 분석을 통해 중합과 관능기 도입이 성공적으로 이루어 졌음을 확인하였고, 가교 구조의 형성이 응집력 향상에 효과적임을 초기 접착 실험을 통해 입증하였다. 이 하이브리드 PSA 시스템은 전자, 의료, 자동차 산업 등 고성능 접착 소재로의 활용 가능성이 높다고 판단된다.

후 기

이 연구는 2025년도 산업통상자원부 및 한국산업기술기획평가원(KEIT) 연구비 지원에 의한 연구임(20019197).

REFERENCES

1. An, S. H., Jang, H. G., Joung, Y. H., Kim, S. J., Kim, M. W., Kim, F. S., and Kim, J., "Low-temperature Fast-curing Cationic Latent Curing Agent for One-component Epoxy Adhesives for Electronic Materials," *Composites Research*, Vol. 37, No. 5, 2024, pp. 393-401.
2. Choi, U. J., Kim, H. G., Cho, K. S., Lee, D. H., and Min, K. E., "Adhesion Properties of Acrylic Adhesives according to the Chemical Structure of Comonomers," *Polymer (Korea)*, Vol. 31, No. 5, 2007, pp. 369-373.
3. Anwar, A. R., Sajjad, M. T., Johar, M. A., Hernández-Gutiérrez, C. A., Usman, M., and Łepkowski, S. P., "Recent Progress in Micro-LED-based Display Technologies," *Laser & Photonics Reviews*, Vol. 16, 2022, 2100427.
4. Heo, S. B., Lee, S. Y., Kim, J. H., and Kim, C. G., "Study on the Improvement of Epoxy Property for Aluminum Conductor Composite Core," *Composites Research*, Vol. 32, No. 6, 2019, pp. 349-354.
5. Jeong, I. S., Kim, Y. S., and Goh, M. J., "Development of Highly Thermal Conductive Liquid Crystalline Epoxy Resins Bearing Phenylcyclohexyl Mesogenic Moieties," *Composites Research*, Vol. 30, No. 6, 2017, pp. 350-355.
6. Li, Z. Y., Kim, G., and Bae, J. Y., "Effect of Acryl-modified Poly(BA-co-GMA) on Physical Properties of Photo-curable Resin," *Polymer (Korea)*, Vol. 46, No. 5, 2022, pp. 543-550.
7. Wang, H. S., Lee, S. H., Bu, S. H., Kim, H. D., and Song, K., "Effects of Chemical Structure of Additives on Adhesive Property of Photo-curable Acrylate Resin," *Polymer (Korea)*, Vol. 43, No. 6, 2019, pp. 879-888.
8. Dogan, B., Catak, S., Van Speybroeck, V., Waroquier, M., and Aviyente, V., "Free Radical Polymerization of Ethyl Methacrylate and Ethyl A-hydroxy Methacrylate: A Computational Approach to the Propagation Kinetics," *Polymer*, Vol. 53, No. 15, 2012, pp. 3211-3219.