

자외선 경화에 의한 아크릴 공중합체/다관능성 단량체 복합 감압점착제의 점착특성 변화

유종민 · 방패리 · 김형일[†] · 박지원* · 이승우* · 김현중* · 김경만**

충남대학교 공과대학 공업화학과, *서울대학교 환경재료과학전공, **한국화학연구원 에너지소재연구센터

(2011년 9월 15일 접수, 2011년 11월 15일 수정, 2011년 11월 15일 채택)

Variation of Adhesion Characteristics of Acryl Copolymer/Multi-functional Monomer Based PSA by UV Curing

Chong-Min Ryu, Bei-Li Pang, Hyung-II Kim[†], Ji-Won Park*, Seung-Woo Lee*,
Hyun-Jung Kim*, and Kyung-Man Kim**

Department of Industrial Chemistry, Chungnam National University, 220 Gung-dong, Yuseong, Daejeon 305-764, Korea

*Program in Environmental Materials Science, Seoul National University, Seoul 151-921, Korea

**Energy Materials Research Center, Korea Research Institute of Chemical Technology, Daejeon 305-600, Korea

(Received September 15, 2011; Revised November 15, 2011; Accepted November 15, 2011)

초록: 아크릴 공중합체의 구조와 다관능성 단량체의 관능성 및 함량을 조절하여 반도체 제조공정에 적합한 자외선 경화형 점착제를 제조하였다. 아크릴 공중합체는 점착력을 부여하는 기본수지로 사용되었고 다관능성 단량체는 광가교 특성으로 인하여 3차원 가교구조와 가교밀도를 변화시키기 위해 사용하였다. 아크릴 공중합체는 단량체 조성에서 2-ethylhexyl acrylate의 함량이 감소할수록 자외선 조사 후의 박리 점착력이 감소하였다. 광경화 특성을 갖는 다관능성 단량체의 탄소 이중결합 관능성이 증가할수록 자외선 조사 후 가교밀도가 증가하여 박리 점착력이 감소하였고 박리 후 웨이퍼 표면에 남게 되는 점착제 잔사물도 크게 감소하였다. 6관능성 단량체를 20 phr 포함하는 광가교형 감압점착제가 자외선 조사 전 점착력이 높고, 자외선 조사 후 박리 점착력이 낮고, 박리 후 웨이퍼 표면에 남게 되는 점착제 잔사물이 가장 적었다.

Abstract: Ultra violet (UV) curable pressure sensitive adhesives (PSA) were prepared by controlling both the structure of acryl copolymer and the functionality and content of multi-functional monomers. Acryl copolymer worked as the base polymer for giving the tackiness. Multi-functional monomers were used to vary the crosslinked structure and the degree of crosslink. Acryl copolymer showed the reduced peel strength after UV curing by decreasing the content of 2-ethylhexyl acrylate in the monomer composition. Both the peel strength of PSA and the content of residue found on silicon wafer decreased after UV curing by increasing the functionality of multi-functional monomers. UV curable PSA containing 20 phr six-functional monomer showed the higher peel strength before UV curing and the lower peel strength and the least residue on silicon wafer after UV curing.

Keywords: ultra violet, photo-curing, pressure sensitive adhesive, acryl copolymer, multi-functional monomer.

서 론

감압점착제(pressure sensitive adhesive, PSA)는 물, 용제, 빛, 열 등의 원동력 없이 지압과 같은 극히 작은 압력으로 단시간 내에 다른 물체의 표면에 접착이 가능할 뿐만 아니라 떼어낼 경우 피착물을 오염시키지 않고 쉽게 떨어지는 점착제를 말한다.^{1,2} 아크릴 점착제는 여러 아크릴 단량체와 관능기의 조합을 통하여 재박리성, 점착력, 응집력 등의

물성을 조절하기 용이하여 가장 널리 사용되고 있는 점착제이다.^{3,4} 아크릴 점착제는 산업적으로 다양한 분야에 활용되고 있는데 최근 전자제품 시장의 괄목할 만한 성장에 따라 반도체 가공, 전자제품 가공 등의 공정에 필수적으로 적용되고 있으며 고부가가치 점착제로의 용도가 크게 확대되고 있다.

반도체 제조 공정의 간략화와 신뢰성 향상을 위해 점착제가 중요하게 사용되고 있는데, 이 중에서 다이싱 테이프는 실리콘 웨이퍼의 백그라인딩 또는 다이싱 공정에서 반도체 칩을 각각 고정시키거나 절단 후 다음 공정으로 이송시키기 위해 분리하는 기능을 가지고 있다.⁵⁻⁷ 다이싱 테이프에 사용되는 자외선 경화형 점착제는 점착력을 가지는 아크릴계

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

접착제, 광중합 성질을 가지는 다관능성 단량체 그리고 광개시제를 혼합하여 제조하는데 자외선을 조사함으로써 가교반응이 진행되어 최종적으로 3차원 그물 망상구조를 가지게 된다.⁸⁻¹⁴ 자외선 경화는 에너지원으로 사용되는 자외선을 상온에서 조사하여 짧은 시간에 경화를 진행시킬 뿐만 아니라 에너지 절감, 무용제화를 통한 친환경 반응, 낮은 원료 손실 및 높은 고형분 생성 등이 가능하다. 따라서 이러한 장점으로 인하여 인쇄용 잉크, 금속 및 목재의 코팅, 전자산업, 의료 및 홀로그램 저장 매체, 접착제 등 광범위한 분야에 사용되고 있다.¹⁵

자외선 경화형 다이싱용 접착제는 자외선 조사전에는 높은 접착강도를 유지하여야 하는 반면, 자외선 조사후에는 반도체 칩의 박리가 용이하도록 접착강도가 매우 낮아야 하고 또 박리과정에서 반도체 칩 표면에 접착제의 잔사가 남지 않아야 한다. 특히 실리콘 웨이퍼의 두께가 매우 얇아지고 있는 추세에서 이러한 다이싱용 접착제의 요구조건은 더욱 엄격해지고 있는 상황이다. 하지만 접착제의 주요 구성성분과 조성에 따라 접착특성이 어떠한 변화를 나타내는지에 대한 체계적인 연구는 아직 미흡한 상태이다.

본 연구에서는 자외선 경화형 접착제의 구성성분중 아크릴 공중합체의 조성을 변화시켜가며 접착강도에 미치는 영향을 조사하고, 광중합 특성의 다관능성 단량체의 관능성

을 변화시켜가며 접착강도 및 박리후 접착제 잔사에 미치는 영향을 조사하고자 하였다. 접착 및 박리강도 특성이 우수하고 피착체에 잔사를 남기지 않는 최적의 자외선 경화형 접착제를 제조하기 위하여 접착제의 구조특성이 접착특성의 변화에 미치는 영향에 대하여 분자량, 유리전이온도, 가교 특성 등의 관련성을 파악하여 해석하고자 하였다

실 험

재료. 접착제 합성을 위한 단량체로는 LG화학의 2-ethylhexyl acrylate(EHA), methyl acrylate(MA), methyl methacrylate(MMA), acrylic acid(AA)를 사용하였고, 용제로는 Marubeni Chemix 사의 ethyl acetate(EAc), 여천 NCC 사의 toluene, 금호석유화학의 acetone을 사용하였다. 접착용 아크릴 공중합체의 내부 가교를 위해 isocyanate계 가교제로 Nippon Polyurethane 사의 L-75(toluene diisocyanate adduct type)를 사용하였고, 반응개시제로는 Japan Hydride사의 AIBN(α, α' -azobisisobutyronitrile)을 사용하였다. IPN(interpenetrating polymer network) 구조를 형성시키기 위하여 사용된 광중합특성의 다관능성 단량체로는 Skycotec사의 DPHA(dipentaerythritol hexacrylate), 미원상사의 TPGDA(tripropylene glycol diacrylate), TMPTA(trimethylol propane triacrylate)를 사용하였고, 광개시제로는 Ciba사의 Irgacure 184(1-hydroxy cyclohexyl phenyl ketone)을 사용하였다.

접착제 및 시편 제조방법. Figure 1에 도시한 중합장치를 사용하여 라디칼 용액중합방법에 의해 아크릴 공중합체 접착제를 제조하였다. 아크릴 단량체의 조성과 반응조건을 Table 1에 나타내었고 사용한 다관능성 단량체의 화학구조를 Figure 2에 나타내었다.

아크릴 공중합체 합성. Table 1에 표시된 각 아크릴 단량체와 아세톤 30 g, 초산에틸 277.5 g, 톨루엔 442.5 g, AIBN 2.3 g을 중합반응기에 넣고 질소를 충전한 후 90 °C에서 6.5시간 동안 교반하면서 중합을 진행시켰다. 중합된 아크릴 공중합체 용액에 가교제, 다관능성 단량체, 광개시제를 혼합하여 접착제를 제조하였다.

접착필름 시편제작: 접착용 시편 기재인 폴리올레핀 필름(두께 100 μm) 위에 접착제 용액을 도포하고 80 °C에서 3분간 건조시킨 후 43 °C에서 3일간 숙성한 것을 접착시편(접착제 두께 10~20 μm)으로 사용하였다.

접착력 측정: ASTM D3330 방법에 따라 SUS-304 피착

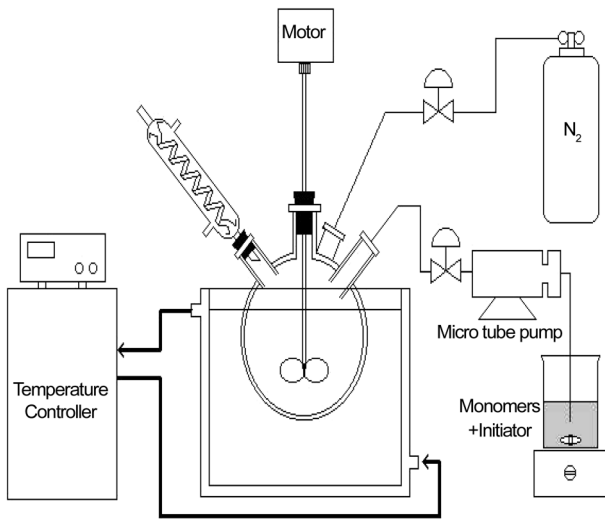


Figure 1. Schematic diagram of polymerization apparatus.

Table 1. Polymerization Conditions and Physical Characteristics of Acryl Copolymers

	Composition(g)				Reaction conditions		Conversion (%)	Viscosity (cps)	Molecular weight (g/mol)	T_g (°C)
	EHA	MA	MMA	AA	Temp.(°C)	Time(hr)				
PA-1	180	270	25	25	90	6.5	98.3	6800	390000	-18
PA-2	225	225	25	25	90	6.5	97.2	6200	410000	-21
PA-3	270	180	25	25	90	6.5	96.0	6300	370000	-25

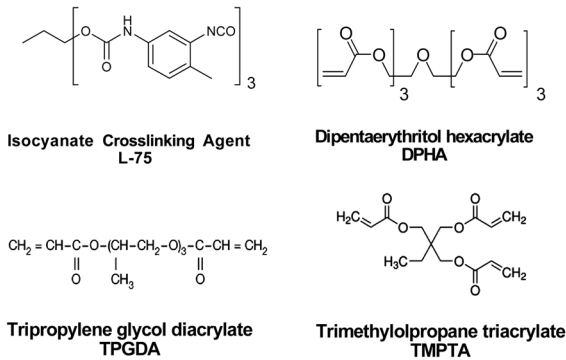


Figure 2. Chemical structures of crosslinking agent and multi-functional monomers.

재에 폭(25.4 mm) × 길이(100 mm)의 접착필름을 2 kg의 물을 사용하여 300 mm/min의 속도로 압착하여 접착력 측정 시편을 제조하였다. 자외선 조사 전 접착력은 압착 20분 후에 측정하였고, 자외선 조사 후 접착력은 압착 20분 후에 180 mJ의 자외선을 조사한 후 측정하였다. 접착력은 인장기 (Mecmesin, England)를 이용하여 300 mm/min의 속도로 180° 박리강도(gf/inch)를 측정하였다.

자외선 조사: 100 W의 고압수은 램프가 부착되어 있는 자외선조사 장치에 접착력 측정 시편을 넣은 후 파장 365 nm의 자외선을 전체 조사량 180 mJ로 조사하였다. 자외선 경화형 접착시편은 자외선 조사 장치에 넣기 전까지 완전히 밀봉하여 저온에서 보관하였다.

점도 측정: 아크릴 공중합체 접착용액의 점도는 25 °C 항온조에 약 1시간 보관 후 Brookfield 사의 RV형 점도계와 spindle No. 3을 이용하여 측정하였다.

결과 및 토론

아크릴 공중합체 조성에 따른 접착물성 변화. 일반적으로 접착물성은 아크릴 공중합의 조성, 분자량, 첨가제, 가교도 등에 의해 조절된다. 아크릴 공중합체 접착제에 대한 자외선 조사에 의해 광가교가 진행되어 3차원 그물 구조를 가지게 되면 아크릴 공중합체 고분자사슬의 유동성에 큰 제약이 나타나게 되어 결과적으로 탄성률의 증가, 부피의 수축, 그리고 접착력의 저하 현상을 유발하게 된다.^{16,17} 아크릴 공중합체 접착제 조성에서 다관능성 단량체의 함량이 증가하면 자외선 조사후 가교밀도가 증가하여 박리시에 접착력이 크게 감소하게 된다.

아크릴 공중합체 조성에 따른 접착특성의 변화를 조사하기 위하여 아크릴 단량체중 자외선 조사전 접착력에 큰 영향을 미치는 EHA와 MA의 함량을 변화시켜 제조한 아크릴 공중합체 PA-1, PA-2, PA-3을 기본수지로 하여 가교제, 다관능성 단량체 DPHA, 광개시제를 혼합하여 제조한 PSA를 Table 2에 나타낸 조성으로 제조하였다. 이렇게 제조된 PSA를 사용하여 자외선 조사 전 및 조사 후의 180°

Table 2. Compositions of PSAs Prepared with Acryl Copolymers of PA-1, PA-2, and PA-3

PSA	PA-1HA	PA-2HA	PA-3HA
Acryl copolymer	PA-1	PA-2	PA-3
Crosslinker L-75(phr)	2.5	2.5	2.5
Multi-functional monomer DPHA(phr)	20	20	20
Photoinitiator Irg 184(phr)	5	5	5

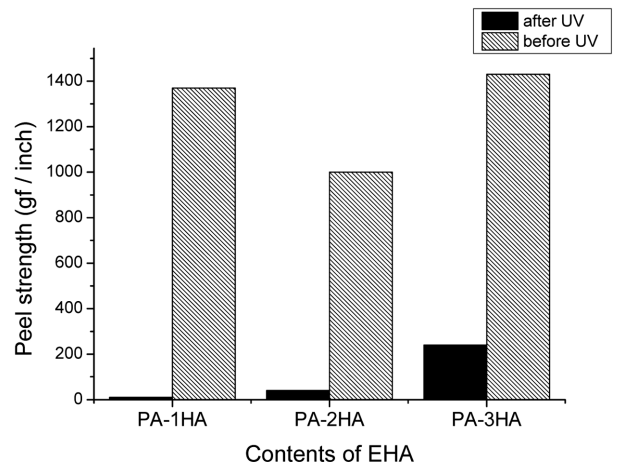


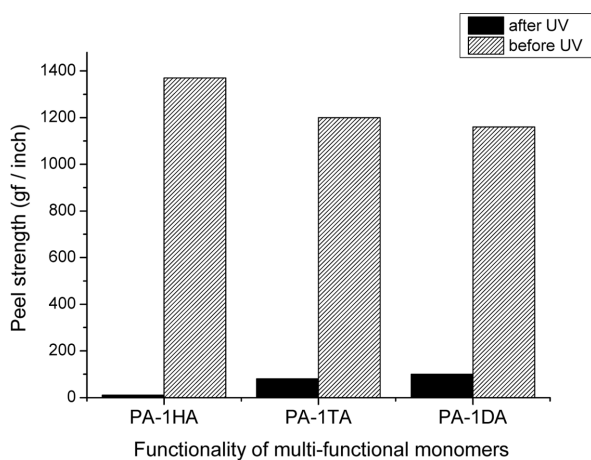
Figure 3. Variation of peel strength of various UV-curable PSAs depending on UV irradiation. PSAs were prepared with acryl copolymer PA-1HA, PA- 2HA, and PA- 3HA containing EHA content.

박리 접착력을 측정하여 그 결과를 Figure 3에 나타내었다. 자외선 조사 후 접착력은 다관능성 단량체의 광가교 밀도가 서로 일정하게 유지되는 PSA 조성이었으므로 큰 차이를 보여주지 않았으나 아크릴 공중합체에서 결사슬 길이가 큰 EHA의 함량이 증가할수록 약간 증가하는 경향을 나타내었다. 일반적으로 접착제의 접착력은 접착제의 젖음성과 밀접한 관련이 있는데 이러한 접착제의 젖음성은 고분자의 결사슬 길이가 길어져 유리전이 온도가 낮아질 경우 증가하는 것으로 알려져 있다. 그러나 자외선 조사 전의 접착력은 아크릴 공중합체의 조성에 따라 비교적 큰 차이를 보여주었다. 이는 광가교가 진행되지 않아 고분자사슬의 유동성이 높은 상태에서는 유리전이 온도 뿐만 아니라 아크릴 공중합체의 분자량도 접착제의 젖음성에 영향을 미치기 때문이었다.

다관능성 단량체의 관능성에 따른 접착물성 변화. 자외선 조사 전 및 조사 후의 접착력 변화가 가장 크게 나타난 아크릴 공중합체 PA-1을 기본수지로 선정하여 다관능성 단량체의 관능성에 따른 접착특성의 변화를 조사하기 위하여 PA-1에 가교제, 다관능성 단량체, 광개시제를 혼합하여 제조한 PSA를 Table 3에 나타낸 조성으로 제조하였다. 이렇게 제조된 PSA를 사용하여 자외선 조사 전 및 조사 후의 180° 박리 접착력을 측정하여 그 결과를 Figure 4에 나타

Table 3. Compositions of PSAs Prepared with Acryl Copolymer of PA-1 and Various Multi-functional Monomers

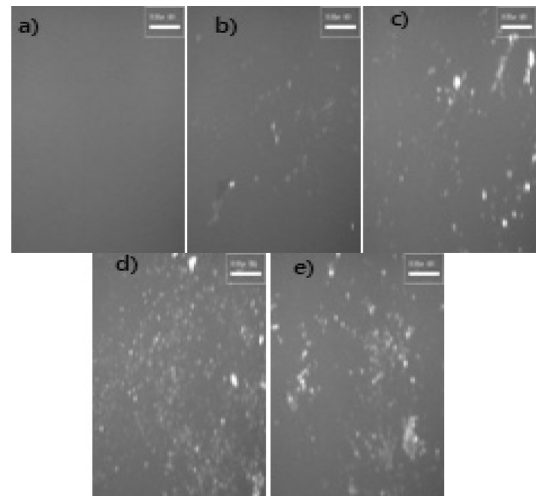
PSA		PA-1HA	PA-1TA	PA-1DA
Acryl copolymer		PA-1	PA-1	PA-1
Crosslinker L-75(phr)		2.5	2.5	2.5
Multi-functional monomer (phr)	DPHA	20	-	-
	TMPTA	-	20	-
	TPGDA	-	-	20
Photoinitiator Irg 184(phr)		5	5	5

**Figure 4.** Variation of peel strength of various UV-curable PSAs depending on UV irradiation. PSAs were prepared with acryl copolymer PA-1 and various multi-functional monomers TPGDA, TMPTA, and DPHA containing 2, 3, and 6 carbon double bond functionalities, respectively.

내었다.

자외선 조사 후 점착력은 Kim의¹⁸ 연구결과와 마찬가지로 다관능성 단량체의 관능성이 2관능성에서 6관능성으로 증가할수록 탄소 이중결합 관능기가 증가하고 이에 따라 광가교 밀도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다. 또한 자외선 조사전의 점착력도 Hayashi 등의¹⁹ 연구결과와 마찬가지로 다관능성 단량체의 종류에 따라서 뚜렷한 차이를 보였는데 이는 같은 종류의 아크릴 공중합체에 대하여 다관능성 단량체의 종류에 따라 혼화성이 차이가 있고 이로 인하여 점착제의 젖음성에 영향을 미치기 때문인 것으로 판단되었다.

광경화형 점착필름을 실리콘 웨이퍼에 부착한 후 자외선 조사에 의해 경화시킨 후 박리시키고 나서 웨이퍼 표면에 남아 있는 점착제 잔사물을 현미경을 통하여 관찰하였고 그 결과를 Figure 5에 나타내었다. 박리 후 웨이퍼 표면에 남아 있는 점착제 잔사물을 보면 자외선 조사 전 및 조사 후의 점착력 변화의 결과와 마찬가지로 광가교 밀도가 충분히

**Figure 5.** Surface image of silicon wafer after peeling of various PSAs : a) PA-1HA; b) PA-2HA; c) PA-3HA; d) PA-1TA; e) PA-1DA. Scale bar represents 100 μm .

높지 못한 시편의 경우에는 박리시에 점착파괴가 아닌 점착층의 응집파괴가 일어나 피착재인 웨이퍼에 일부 점착제 잔사물이 나타나는 것이 확인되었다.

자외선 조사 후의 점착력 변화 결과에서 확인하였던 바와 같이 6관능성의 단량체를 사용하여 광가교를 진행하였다 라도 EHA의 조성이 높은 아크릴 공중합체를 사용한 PSA인 PA-2HA나 PA-3HA에서는 웨이퍼 표면에 점착제 잔사물이 어느 정도 나타남을 알 수 있었다. 반면, EHA의 단량체 조성이 낮은 아크릴 공중합체를 사용한 PSA에서도 다관능성 단량체의 관능성이 낮아 자외선 조사 후 광가교 밀도가 낮게 형성되는 PSA인 PA-1TA나 PA-1DA의 경우에는 웨이퍼 표면에 점착제 잔사물이 상당히 많이 나타남을 확인하였다. 이는 저관능기 단량체들의 경우 자외선 조사에 의해 광가교반응은 진행되었으나 점착력이 어느 정도 유지되고 있는 것으로 보아 피착재와 점착제 상호간의 점착력이 광가교 점착층의 응집력보다 더 크기 때문에 점착층의 응집파괴가 우세하여 많은 점착제 잔사물을 남기게 되는 것임을 알 수 있었다.

다관능성 단량체의 함량에 따른 점착물성 변화. 자외선 조사 전 및 조사 후의 점착력 변화가 가장 크게 나타났고 박리 후 웨이퍼 표면에 남은 점착제 잔사물의 함량이 가장 낮았던 PSA인 PA-1HA에 대하여 다관능성 단량체의 함량에 따른 점착특성의 변화를 조사하기 위하여 PA-1에 가교제, 다관능성 단량체 DPHA, 광개시제를 혼합하여 제조한 PSA를 Table 4에 나타난 조성으로 제조하였다. 이렇게 제조된 PSA를 사용하여 자외선 조사 전 및 조사 후의 180° 박리 점착력을 측정하여 그 결과를 Figure 6에 나타내었다.

자외선 조사 후 점착력은 Hayashi 등의¹⁹ 연구결과와 마찬가지로 다관능성 단량체의 함량이 증가할수록 광가교 밀도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다. 반면,

Table 4. Compositions of PSAs Prepared with Acryl Copolymer of PA-1 and Various Contents of Multi-functional Monomer DPHA

PSA	PA-1HA05	PA-1HA10	PA-1HA15	PA-1HA20
Acryl copolymer	PA-1	PA-1	PA-1	PA-1
Crosslinker L-75(phr)	2.5	2.5	2.5	2.5
Multi-functional monomer DPHA(phr)	5	10	15	20
Photoinitiator Irg 184(phr)	5	5	5	5

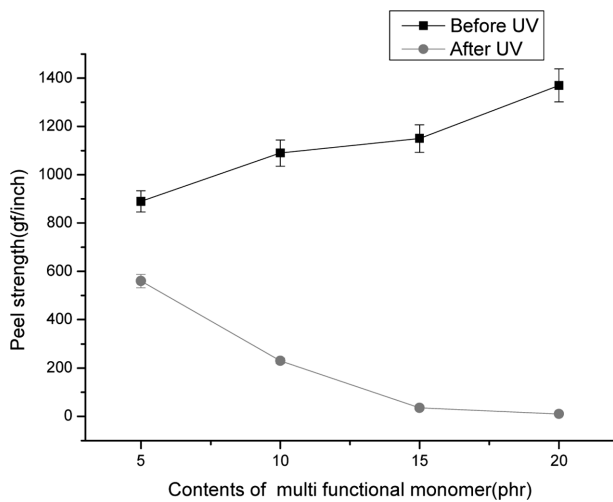


Figure 6. Variation of peel strength of various UV-curable PSAs depending on UV irradiation. PSAs were prepared with acryl copolymer PA-1 and various contents of multi-functional monomer DPHA.

자외선 조사전의 점착력은 다관능성 단량체의 함량이 증가함에 따라 완만히 증가하는 경향을 나타냈는데 이는 아크릴 공중합체에 비해서는 분자량이 훨씬 적은 다관능성 단량체의 함량이 증가할수록 점착제의 고분자사슬의 유동성이 증가하여 젖음성 향상에 따라 점착력이 상승하였기 때문인 것으로 판단되었다.

광경화형 점착필름을 실리콘 웨이퍼에 부착한 후 자외선 조사에 의해 경화시킨 후 박리시키고 나서 웨이퍼 표면에 남아 있는 점착제 잔사물을 현미경을 통하여 관찰하였고 그 결과를 Figure 7에 나타내었다. 박리 후 웨이퍼 표면에 남아 있는 점착제 잔사물을 보면 자외선 조사 전 및 조사 후의 점착력 변화의 결과와 마찬가지로 다관능성 단량체의 함량이 충분히 크지 못하여 광가교 밀도가 높지 않은 시편의 경우에는 박리시에 점착파괴가 아닌 점착층의 응집 파괴가 일어나 피착체인 웨이퍼에 일부 점착제 잔사물이 나타나는 것이 확인되었다. 반면, 다관능성 단량체의 함량이 20 phr에서는 자외선 조사 후의 점착력이 일정하게 낮은 상태로 나타났고 박리 후 웨이퍼 표면에 남아 있는 잔사물도

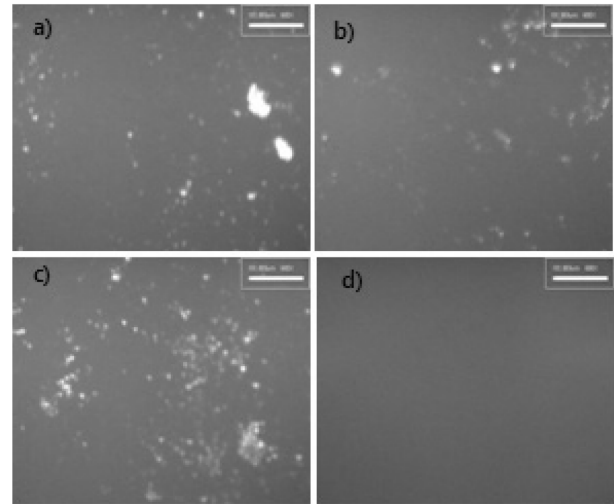


Figure 7. Surface image of silicon wafer after peeling of various PSAs : a) PA-1HA-05; b) PA-1HA-10; c) PA-1HA-15; d) PA-1HA-20. Scale bar represents 100 μ m.

거의 발견할 수 없었다. 다관능성 단량체 DPHA를 20 phr 이상으로 하였던 추가 실험에서는 오히려 자외선 경화 후 박리 점착력과 박리 후 웨이퍼 표면에 남아 있는 점착제 잔사물이 증가하는 경향을 보였다. 이는 6관능성 DPHA 함량이 과다할 경우, 자외선 조사에 의해 3차원 가교구조가 형성되면서 점착제내 고분자사슬들의 유동성이 저하함에 따라 광가교 반응이 빠른 속도로 진행되지 못하여 결과적으로 미반응 DPHA양이 증가하기 때문인 것으로 판단되었다.¹⁹ 따라서 반도체 제조공정에 적용하기 위하여 점착 및 박리강도 특성이 우수하고 피착체에 잔사를 남기지 않는 최적의 자외선 경화형 점착제를 제조하기 위해서는 점착특성을 나타내는 아크릴 공중합체의 구조뿐만 아니라 광경화 특성의 다관능성 단량체의 관능성과 함량도 중요한 인자가 되는 것을 확인할 수 있었다.

결론

반도체 제조공정에 적용하기 위하여 점착 및 박리강도 차이가 크고 피착체에 잔사를 남기지 않는 자외선 경화형 점착제를 제조하고자 하였고 이를 위해 점착특성을 나타내는 아크릴 공중합체의 구조, 광경화 특성의 다관능성 단량체의 관능성 및 함량을 변화시켜가며 다양한 자외선 경화형 점착제를 합성하였다.

아크릴 공중합체는 점착력에 큰 영향을 미치는 EHA와 MA의 함량을 변화시켜 다양한 구조의 기본 점착수지를 합성하였고 자외선 조사에 의해 광가교가 진행될 수 있는 다관능성 단량체로 탄소 이중결합 관능기가 2관능성, 3관능성, 6관능성인 단량체를 사용하여 3차원 가교구조와 가교밀도를 변화시켰다. 그 결과 아크릴 공중합체 기본수지에 있어서는 EHA의 함량이 감소할수록 자외선 조사 후의

박리 점착력이 감소하는 경향을 나타내었다. 다관능성 단량체의 종류에 있어서는 탄소 이중결합 관능성이 증가할수록 자외선 조사 후 가교밀도가 증가하여 박리 점착력이 감소할 뿐만 아니라 박리 후 웨이퍼 표면에 남게 되는 점착제 잔사물도 크게 억제되는 것을 확인하였다. 또한 6관능성 단량체의 함량에 있어서는 20 phr을 포함하는 광가교형 PSA가 자외선 조사 전 점착력이 높고, 자외선 조사 후 박리 점착력이 낮고, 박리 후 웨이퍼 표면에 남게 되는 점착제 잔사물이 거의 발견되지 않아 반도체 제조공정용 자외선 경화형 점착제로 가장 우수한 특성을 나타내었다.

감사의 글: 본 연구는 지식경제부, 산업기술연구회의 협동연구사업 일환인 “차세대 반도체 MCP 핵심기술 개발 사업”의 지원에 의한 것입니다.

참 고 문 헌

1. D. Satas, *Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology*, 2nd edition, Van Nostrand Reinhold, New York, 1989.
2. I. Benedek, *Pressure-Sensitive Adhesive and Applications*, 2nd edition, Marcel Dekker, New York, 2004.
3. C. M. Ryu, Y. H. Nam, S. H. Lee, H. I. Kim, D. H. Lim, H. J. Kim, and K. M. Kim, *J. Adhes. Interf.*, **10**, 134 (2009).
4. M. Nakazawa, *J. Adh. Soc. Jap.*, **36**, 28 (2000).
5. S. W. Lee, J. W. Park, H. J. Kim, H. I. Kim, and C. M. Ryu, *J. Adhes. Interf.*, **11**, 3 (2010).
6. T. Kauffman, *Adhesives Age*, **Sep.**, 8 (1999).
7. M. Okido, *Adhesion*, **43**, 23 (1999).
8. K. Ebe, H. Senom, and K. Horigome, *J. Appl. Polym. Sci.*, **90**, 436 (2003).
9. K. Horigome, K. Ebe, and S. Kuroda, *J. Appl. Polym. Sci.*, **93**, 2889 (2004).
10. H. Coyard, P. Deligny, and N. Tuck, *Resins for Surface Coatings: Acrylics and Epoxies*, 2nd ed., SITA Technology Ltd., London, 2001.
11. N. Numazawa and Y. Mineura, US Patent 5,955,512 (1997).
12. H. Noguchi, N. Numazawa, Y. Mineura, and K. Ebe, US Patent 5,976,691 (1997).
13. N. Umehara, M. Amagai, M. Kobayashi, and K. Ebe, US Patent 6,007,920 (1998).
14. C. Decke, *Polym. Intl.*, **45**, 133 (1998).
15. R. Malik, *Adhesives Age*, **Feb.**, 35 (2002).
16. M. F. Tse, *J. Adhes. Sci. Technol.*, **3**, 551 (1989).
17. K. Ebe, H. Narita, K. Taguchi, and T. Saito, *CRCA'88IN Tokyo*, Japan, p 250 (1998).
18. I. B. Kim and M. C. Lee, *Korean Chem. Eng. Res.*, **46**, 76 (2008).
19. S. Hayashi, J. Kim, M. Kajiyama, H. Ono, H. Mizumachi, and Z. Zufu, *J. Appl. Polym. Sci.*, **71**, 651 (1999).