<研究論文>

(受理：2019年8月21日)

粘着剤組成物の力学的性質の研究第3報
アクリル系粘着剤分子量分布が架橋形態に及ぼす影響

浦濱 圭彬*・長谷川友希**・村田 順平*・岸 肇*

要 旨

分子量と分子量分布(PDI)が異なるアクリル酸ブチル-アクリル酸共重合体を重合し、ゲル分率、膨潤度、ゾルの分子量分布に及ぼす架橋度の影響を研究した。PDIが低架橋剤濃度でのゲル生成開始に大きく寄与することが明らかとなった。PDIは高架橋剤濃度でのゲル分率の飽和にも関係していた。ゲル分率と膨潤度は同時測定でき、同程度のゲル分率であっても、膨潤度は原料共重合体のPDIに大きく依存していることがわかった。また、ゾルの分子量分布を測定した結果、低架橋剤当量組成(すなわち、0.001当量および0.002当量)のゾル中に分子量100万以上の分布の増加が認められ、同時に低分子量域の分布は減少した。このことは架橋剤により共重合体が最初に二量化して高分子量ポリマーを与え、次いで架橋の形成(ゲル形成)が起こったことを意味する。

1. 緒 言

粘着テープは、広い分野で多様な使われ方をしているが、その特性は粘着剤の力学的性質に大きく依存している。例えば、貼付するときには短時間領域の特性が大きな要素となる。また、その多くは貼付後そのままの状態を長時間保持するという目的で使用されているので、そのときには長時間領域の特性が支配因子となる。粘着テープが工業用途に使用されるようになり粘着剤の力学的性質も保持性能・耐熱性・応力緩和・再剥離性等で高度なものが要求されている。この要求に対応するために化学架橋されたアクリル系粘着剤が多用されている。たとえば、JIS Z 1541 “超強力両面粘着テープ”¹⁾に適合する両面粘着テープでは、ゲル分率80%以上、膨潤度12倍程度と高度に架橋された物が上市されており、耐熱性、耐冷熱サイクル、寿命(保持性能)等で優れた性能を発揮している。

前報²⁾では重量平均分子量(以下Mwと表記)、多分散

性指数(以下PDIと表記)が架橋度およびクリープコンプライアンスに与える影響について研究した。その結果、PDIにより架橋挙動が異なることが明らかとなり、またクリープコンプライアンスの時間変化(変形の時間依存性)にもPDIが大きく寄与していることも明らかとなった。

そこで、本研究では、前報と同一組成のブチルアクリレート-アクリル酸共重合体でMw、PDIの異なるアクリルポリマー4水準を粘着剤製造会社に重合していただき分子量、分子量分布、架橋度がゲル分率、膨潤度、ゾル分の分子量分布等の架橋挙動に与える影響を研究した。以下に報告する。

2. 方法および試料

2.1 測定試料

2.1.1 アクリル系ポリマー

本研究に用いた試料のアクリル系ポリマーはブチルアクリレート(BA)とアクリル酸(AA)の共重合体樹脂で、その組成はBA/AA=95/5(重量比)である。MwとPDIの異なる試料の重合を、フリーラジカル重合を藤倉化成株式会社と綜研化学株式会社、リビングラジカル重合を大塚化学株式会社で重合していただいた。

分子量50万程度のフリーラジカル重合アクリル系ポリマーを標準試料とし、同程度のMwでPDIが大きいポリマー、PDIが小さいリビングラジカル重合アクリル系ポ

* 兵庫県立大学大学院工学研究科

姫路市書写 2167 〒671-2201

** 兵庫県立大学大学院工学研究科(現;コベルコ建機㈱)

兵庫県明石市大久保町八木 740 〒674-0063

(原稿受付日:2019年7月22日)

〔「粘着剤組成物の力学的性質の研究第1報」Vol.53, No.12 (2017), 「粘着剤組成物の力学的性質の研究第2報」Vol.54, No.1 (2018)に掲載〕

リマー、Mw が小さく PDI が FR500k 標準試料と同程度のポリマーの 4 種類のポリマーを測定試料とした。また BA/AA 共重合体 100 g 中のアクリル酸の含有量は 0.0694 mol となる。分子量 50 万の場合、1 分子中のアクリル酸量は 340 個程度である。

2.1.2 架橋剤

アクリル系粘着剤の架橋にはイソシアネート系（一般的にはコロネート L）が多用されている。しかしその配合量は共重合体中のアクリル酸に対し 0.25 ～ 1 当量である。1 当量では 340 個のアクリル酸全てを架橋することになる。架橋に必要な量の 100 倍程度が配合されている。これは異常な配合量であり、化学架橋以外のメカニズムを考慮しなければならない。そこで今回の一連の研究では、架橋剤としてエポキシ系の N,N,N',N'-テトラグリシジル-m-キシリレンジアミン（TETRAD-X、三菱ガス化学株式会社：以下 T-X と表記）を使用した。4 官能 T-X の分子量は 360.5 g/mol なので計算上のエポキシ当量は 90.1 g/mol となる。今回使用した T-X のエポキシ当量は 98.3g/mol であった。この T-X を 44.9 倍量のトルエンで希釈して配合に使用した。

T-X では 0.01 当量配合でゲル分率は 0.6 以上になるといわれている。0.01 当量ということは、計算上共重合体 1 分子当たり 3.4 個エポキシ基と反応しているということになり妥当である。今回の研究は T-X 配合量を 0eq ～ 0.024eq の範囲で行った。

2.1.3 モデル粘着テープの作製

以下の手順でモデル粘着テープを作製した。

粘着剤溶液にエポキシ系架橋剤 T-X を規定量配合し、30 分間攪拌した。これをシリコン系剥離処理された厚さ 38 mm のポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム上にアプリケーションを用いて塗工し、乾燥機内に入れ、120℃で 3 分間加熱した。最終的な粘着剤層の厚さが約 60 mm になるように塗工した。加熱後シリコン系剥離処理された紙セパレータでカバーし 60℃で 20 時間エージングした。

T-X 配合量は 0, 0.001, 0.002, 0.004, 0.006, 0.008, 0.01, 0.012, 0.016, 0.02, 0.024eq の 11 水準で行った。

2.2 SEC

サイズ排除クロマトグラフィー（SHODEX 製 GPC-101）を用い、平均分子量を測定し、また分子量分布（PDI）を求めた。測定試料はテトラヒドロフラン（㈱キシダ化学）を溶媒として 1 wt% に希釈した。

雰囲気温度は 40℃、カラム構成は TSKgel GMHXL + TSKgel G2000、流量は 1 ml/min で測定した。検量線は標準ポリスチレン SHODEX 製：S-2704 (Mw=2,700,000), S-609 (Mw=609,000), S-139 (Mw=139,000), S-53 (Mw=52,500),

S-22 (Mw=21,800), S-609 S-6.9 (Mw=6,940), S-1.3 (Mw=1,270) を用いて作製した。

2.3 ゲル分率および膨潤度

粘着剤のゲル分率測定法は、ソックスレーを用いて溶媒を循環させる方法、フラスコに入れ振とうさせる方法、また静置させる方法など種々ある。静置期間も 1 日から 10 日と大きく異なっている^{3,4)}。今回は試料と溶媒の入った瓶を 1 週間静置する方法で行った。

- (1) まず、100 mm 角に切断した 380 メッシュのポリエステル（テトロン）繊維膜の重さを測定する。そして試料を約 0.1g テトロン膜の上部中央に置き全体の重さを計量する。
- (2) 試料をテトロン膜で包み込みステープラーで固定する。
- (3) 全体の重さを再度計量する。
- (4) 100cc の容器に試料の入ったテトロン膜を入れ、トルエンを約 80cc 注ぎ込む。それを室温に 7 日間放置する。
- (5) その後、テトロン膜の袋を瓶より取り出し、溶剤をウェスでふきとり重量を測定する。
- (6) 130℃に設定された乾燥機に 1 時間投入した後取り出し、再び重量を測定する。

ゲル分率および膨潤度は下記により求めた。

$$\text{ゲル分率} = ((\text{乾燥後の全体の重量}) - (\text{テトロン膜} + \text{ステープラー})) / (\text{初期の試料重量})$$

$$\text{膨潤度} = \{(\text{乾燥前の重量}) - (\text{テトロン膜} + \text{ステープラー})\} / \{(\text{乾燥後の重量}) - (\text{テトロン膜} + \text{ステープラー})\}$$

2.4 ゴル分の SEC

ゴルの分の SEC を測定するために、抽出用溶媒をテトラヒドロフランに変更し 2.3 項（ゲル分率および膨潤度）の手順通りにゴル分を抽出した。抽出液をそのまま用いて 2.2 項（SEC）の条件でゴル分の分子量分布を測定した。

3. 結果と考察

3.1 SEC

Table 1 に実験で使用した試料の一覧を示した。またサイズ排除クロマトグラフィー（SEC）の測定結果と分子量 100 万以上の割合と分子量 10 万以下の割合とも併せて示した。但し各分子量区画の割合は分子量を対数変換した後、計算したものである。Fig. 1 に今回の研究用に各社で重合していただいた試料の SEC 測定結果を示した。試料はフリーラジカル重合では試料名 FR500k (Mw=497k, PDI=4.9), 試料名 FR480k (Mw=483k, PDI=12.1), 試料名

Table 1 Acrylic polymers.

Sample name	Polymerization method	Solvents in Polymer Synthesis	Weight average molecular weight(Mw)	Poly-dispersity index (PDI)	Molecular weight distribution ratio	
					Over 1M	Under 100k
FR500k	Free radical	Ethyl acetate	497k	4.9	0.14	0.21
FR480k	Free radical	Toluene	483k	12.1	0.11	0.33
LV500k	Living radical	Ethyl acetate	467k	1.3	0.02	0.01
FR360k	Free radical	Ethyl acetate	364k	3.9	0.06	0.24

Fig. 1 SEC data of acrylic polymers.

FR360k(Mw=364k, PDI=3.9), リビングラジカル重合では試料名 LV500k(Mw=467k, PDI=1.3) の4種類である。

FR500k と LV500k を比較すると、分子量 10 万以下の割合は FR500k では 0.21, LV500k では 0.01 と LV500k は低分子量物が少ない。しかし注目すべきは LV500k は高分子量物も少ないということである。分子量 100 万以上の割合を比較すると FR500k では 0.14, LV500k では 0.02 と LV500k は高分子量物が少ない。Mw を 50 万付近にするためであるが、このことがゲル分率と膨潤度に大きく影響している。

3.2 ゲル分率と膨潤度

3.2.1 ゲル分率

Fig. 2 に架橋剤 TETRAD-X の配合量変化による FR500k, FR480k, FR360k, および LV500k のゲル分率の変化を示した。

FR500k(Mw=497k, PDI=4.9) では T-X の配合量が 0.002 当量まではゲルが生成していない。0.004 当量で急激にゲル分率が上昇し、0.016 当量でゲル分率は 0.7 以上になって

いる。380mesh にトラップされる大きさに溶媒で膨潤したゲルの生成は 0.002 当量から 0.004 当量の間で起こっている。0.020 当量でゲル分率は 0.8 程度あるが、0.024 当量配合してもゲル分率は大きくならずほぼ飽和している。FR480k(Mw=483k, PDI=12.1) は架橋剤量 0.006 当量でゲルが発生している。ゲルの発生は FR500k に比べて遅い。0.020 当量でゲル分率は 0.65 程度である。0.024 当量配合してもゲル分率は 0.68 で飽和に達していない。FR360k(Mw=364k, PDI=3.9) も 0.006 当量でゲルが発生しており、ゲルの発生は FR500k に比べて遅い。しかし 0.016 当量でゲル分率は FR500k に追いついている。0.024 当量配合するとゲル分率は 0.81 で FR500k と同様にほぼ飽和している。Mw が 10 万程度小さくても T-X が 0.016 当量を超えるとゲル分率という尺度では差は認められない。一方、LV500k(Mw=467k, PDI=1.3) では 0.002 当量まではゲルが生成しないが、0.004 当量でゲル分率が 0.45 となっている。しかも 0.016 当量以上でゲル分率は 0.9 を超えている。

ゲルの生成は、FR500k と LV500k が 0.004eq で、FR480k

Fig. 2 Effect of cross-linking agent on gel fraction of acrylic polymers.

とFR360kは0.006eqである。このようにMwとPDIがT-X当量の小さい範囲でのゲル生成に影響している。Mwのみがゲル生成に寄与しているのでは無いことが明らかとなった。

一方T-Xを0.020当量配合した場合、LV500k(PDI=1.3)でゲル分率は0.94、FR500k(PDI=4.9)でゲル分率は0.78、FR360k(PDI=3.9)でゲル分率は0.78、FR480k(PDI=12.1)でゲル分率は0.64とPDIが小さいほどゲル分率は大きくなり、今回測定した範囲のMw変化はゲル分率に余り影響を与えていない。

T-X0.02当量以上で、MwとPDIによりゲル分率に差がある。フリーラジカル重合の場合、モノマー種の反応速度の差により、アクリル酸の方が反応初期に重合し、反応後期に重合する分子量の低い重合物にはアクリル酸の割合が少なくなっているという可能性がある。しかし河野ら⁴⁾の研究によれば、BA/4-HBA系ではあるけれども、ゾル部分中のアクリル酸の組成比は、フリーラジカル重合とリビングラジカル重合で余り違いが無いことが示されている。

計算上、分子量50万の分子中には1分子当たり約340個のアクリル酸が共重合している。このポリマーが架橋剤量0.004当量でゲルが生成しだすということは、計算上、1分子当たり1.36個の架橋点でゲルが生成するということになる。低分子量物は確率的にゲル化しにくいと思われる。しかし後述するように、Fig. 6やFig. 7のT-X=0.004eq配合試料のゾル分を見ると分子量10万以下の低分子量物の量が減少している。ゲル生成の初期でも低分子量物がゲル化していることが分る。低分子量物の場合、低分子同士が架橋しゲル化するとは考えにくく、高分子量物と結合しゲル化している可能性が有る。

今回のT-X配合量の範囲では、反応速度の差によるア

クリル酸量の分布斑が単なる分子量に比例したアクリル酸量と反応する確率の問題が明らかに出来なかった。

3.2.2 ゾル分の膨潤度

Fig. 3はゲル部分の膨潤度の架橋剤量依存性を示している。あくまでもゲル部分の膨潤度でゾル分の割合等は考慮に入れていない。T-Xが0.01当量で比べてみると、PDI=1.3で20倍、PDI=3.9で26倍、PDI=4.9で24倍、PDI=12.1で32倍とPDIの小さい方が膨潤度は小さい傾向がある。Fig. 2のゲル分率の傾向と一致している。同一架橋剤当量では、ゲル分率が大きいほど膨潤度は小さいということになる。そこで次にゲル分率と膨潤度を調べた。

3.2.3 ゲル分率と膨潤度

Fig. 4は3.2.1項のゲル分率と3.2.2項の膨潤度の関係を示している。図から分るようにゲル分率が大きくなると膨潤度は小さくなっている。しかし、ゲル分率と膨潤度の関係が、1つのマスターカーブにはなっていない。ゲル部分のみの話なので、4種類の粘着剤で同一挙動になっても良いように思われる。

LV500k(PDI=1.3)でゲル分率0.6となるにはT-Xは0.006当量程度で良いが、FR480k(PDI=12.1)でゲル分率0.6となるにはT-Xは0.016当量必要となる。FR480k(PDI=12.1)の場合低分子量物が多く、ゲル分率を大きくするにはこの部分を架橋剤と反応させる必要がある。架橋剤と反応する確率が低い低分子量物をゲル化させるために架橋剤を多く配合する必要がある。この結果低分子量物が1カ所だけでゲル本体に結合して、ぶら下がった状態になった部分架橋構造が数多く出来ている可能性が有る。このため架橋点間分子量が大きくなり、結果として膨潤度が大きくなったと考えられる。やはり、PDI(特に低分子量物の存在)が大きく影響している。

Fig. 3 Effect of cross-linking agent on swelling ratio of gel parts.

Fig. 4 Effect of gel fraction on swelling ratio of gel parts.

ゲル分率 0.6 で比べてみると、PDI=1.3 で 35 倍、PDI=3.9 で 26 倍、PDI=4.9 で 26 倍、PDI=12.1 で 18 倍と PDI の小さい方が膨潤度は大きい傾向がある。同程度のゲル分率であっても元の分子量分布により膨潤度が大きく異なっている。

3.3 ゾル分の分子量分布

標準試料のフリーラジカル重合の FR500k (Mw=497k, PDI=4.9) と PDI が小さいリビングラジカル重合の LV500k (Mw=467k, PDI=1.3) を用いて Mw と PDI が架橋に与える影響についてゾル分の SEC を測定することにより解析した。

3.3.1 フリーラジカル重合アクリルポリマー FR500k

Fig. 5 にフリーラジカル重合の FR500k (Mw=497k,

PDI=4.9) で、架橋剤 T-X の量を変化させたときのゾル分の分子量分布を示した。横軸は分子量で、縦軸は頻度である。溶出するゾル分が T-X 量により異なるので、Fig. 1 と同様に、縦軸の頻度は分子量の対数で正規化している。各分布曲線のピークを示す分子量は T-X 量と共に低分子量側へとシフトしている様に見える。但しゲルが発生していない T-X が 0.001eq と 0.002eq ではピークの位置は少し高分子量側にシフトしている。ゲルの発生には至らないが高分子量化はしている。

Fig. 5 の各架橋剤量でのゾルの分子量分布にゾル分率 (1- ゲル分率) を掛け合わせた結果を Fig. 6 に示した。

Fig. 5, Fig. 6 より次の事が明らかとなった。① T-X が 0.001eq と 0.002eq では分子量 40 万以上の分布が増えている。ゲルの生成までは行かないが、分子同士の結合は起

Fig. 5 Molecular weight distribution of sol fraction of FR500k ($M_w=529k$ PDI=5.3).

Fig. 6 Molecular weight distribution proportional to sol fraction of FR500k ($M_w=529k$ PDI=5.3).

こっている。②前項と対比するようにT-Xが0.001eqと0.002eqでは分子量10万以下の分布が減少している。③ゲルが生成し始めるとゾル分は急激に減少する。④ゲル分率が大きくなると共にゾル分中の高分子量成分は減少する。⑤ Fig. 5では架橋剤量と共に分布曲線のピークを示す分子量は低分子量側へとシフトしている様に見えるが、Fig. 6より明らかなように高分子量成分から順次ゲル化し分布曲線から取り除かれているだけである。

3.3.2 リビングラジカル重合アクリルポリマー LV500k

リビングラジカル重合のLV500k($M_w=467k$, PDI=1.3)での架橋剤T-Xの量を変化させたときのゾル分の分子量分布をFig. 7に示した。横軸は分子量で、縦軸は分子量の対数で正規化した後ゾル分率を掛け合わせた頻度である。各分布曲線のピークの分子量はT-X量と共に低分子量側

へとシフトしているがそのシフト量はFR500kに比べると少ない。

Fig. 7より次の事が明らかとなった。①ゲルが発生していないT-Xが0.001eqと0.002eqでは分子量100万以上の分布が増えている。ゾル分の100万以上の分子量の割合は、T-Xが0eqでは0.02, 0.001eqでは0.08, 0.002eqでは0.11である。T-X:0.002eqの方が高分子量物の割合が多い。またT-Xが0.001eq, 0.002eq, 0.003eq, 0.004eqではMwが100万程度のピークが新たに出来ているように見える。今後はマルチカーブフィッティングの手法で解析を行う予定である。②この現象と対比するようにT-Xが0.001eqと0.002eqでは分子量20万～70万の分布が減少している。FR500kでは分子量10万以下の分布が減少しており挙動が異なっている。③FR500kと同様に、ゲルが生成し始める

Fig. 7 Molecular weight distribution proportional to sol fraction of LV500k (Mw=467k PDI=1.3).

とゾル分は急激に減少する。④ゲル分率が大きくなると共にゾル分中の高分子量成分は減少する。しかし分布曲線のピークを示す分子量は余り変化していない。

4. 結 言

BA/AA=95/5 (重量比) のアクリル系ポリマーで Mw と PDI の異なる試料を 4 種類重合し、架橋度がゲル分率、膨潤度およびゾルに与える影響について研究した。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ① ゲル分率と膨潤度の関係より、ゲル分率が大きくなると膨潤度は小さくなっている。
- ② ゲル分率と膨潤度の関係が、1つのマスターカーブにはなっていない。
- ③ 同程度のゲル分率であっても元の分子量分布により膨潤度が大きく異なっている。例えばゲル分率 0.6 で比べてみると、PDI=1.3 で 35 倍、PDI=3.9 で 26 倍、PDI=4.9 で 26 倍、PDI=12.1 で 18 倍と PDI の小さい方が膨潤度は大きい傾向がある。

次に標準試料のフリーラジカル重合の FR500k (Mw=497k, PDI=4.9) と PDI が小さいリビングラジカル重合の LV500k (Mw=467k, PDI=1.3) を用いて Mw と PDI が架橋に与える影響についてゾル分の SEC を測定することにより解析した。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ① FR500k では、T-X が 0.001eq と 0.002eq では分子量 40 万以上の分布が増えている。ゲルの生成までは行かないが、分子同士の結合は起こっている。これと対比するように T-X が 0.001eq と 0.002eq では分子量 10 万以下の分布が減少している。ゲルが生成し始めるとゾル分は急激に減少する。架橋剤量と共に分布曲線の

ピークを示す分子量は低分子量側へとシフトしている様に見えるが、Fig. 6 より明らかなように高分子量成分から順次ゲル化し分布曲線から取り除かれているのである。

- ② LV500k では、ゲルが発生していない T-X が 0.001eq と 0.002eq では分子量 100 万以上の分布が増えている。また T-X が 0.001 ~ 0.004eq では Mw が 100 万程度のピークが新たに出来ているように見える。この現象と対比するように T-X が 0.001eq と 0.002eq では分子量 35 万 ~ 80 万の分布が減少している。FR500k では分子量 10 万以下の分布が減少しており挙動が異なっている。今後はマルチカーブフィッティングの手法で解析を行う予定である。

謝 辞

本研究の試料を藤倉化成株式会社、綜研化学株式会社、大塚化学株式会社よりご提供いただいた。ここに感謝いたします。

文 献

- 1) JIS Z 1541-1998, “超強力両面粘着テープ”
- 2) Y. Urahama, T. Nakamura, Y. Hasegawa, K. Okada, S. Matsuda, H. Kishi, *J. Adhesion Soc. Jpn.*, **54**, 17 (2018). (浦濱圭彬, 中村拓也, 長谷川友希, 岡田浩一, 松田 聡, 岸肇, 日本接着学会誌).
- 3) N. KARYU, K. SHITAJIMA, Y. TAKENAMI, S. FUJII, Y. NAKAMURA, Y. URAHAMA, *J. Adhesion Soc. Jpn.*, **50**, 2 (2014). (嘉流望, 下嶋康平, 武南行記, 藤井秀司, 中村吉伸, 浦濱圭彬, 日本接着学会誌).
- 4) 河野和浩, 日本接着学会粘着研究会 第 3 期研究発表会講演要旨 (2012).

<Original Paper>

Investigation of the Mechanical Properties of a Pressure-sensitive Adhesive Part 3 Effect of Polydispersity Index (PDI) on Crosslinking Property of Acrylic Polymers

Yoshiaki URAHAMA *, Yuki HASEGAWA **, Junpei MURATA *, Hajime KISHI *

* Graduate School of Engineering, University of Hyogo
2167, Shosha, Himeji, Hyogo 671-2201, Japan

** Graduate School of Engineering, University of Hyogo
current workplace : KOBELCO CONSTRUCTION MACHINERY CO., LTD.
740, Yagi, Okubo-cho, Akashi City, Hyogo Prefecture 674-0063, Japan
(Accepted for publication : August 21, 2019)

Abstract

Butyl acrylate - acrylic acid copolymers with different molecular weights / molecular weight distributions (PDI) were synthesized, and the effect of the degree of crosslinking on the gel fraction, the degree of swelling, and the molecular weight distribution of the sol fraction, were studied. It was revealed that the PDI greatly contributed to the onset of gel formation at low concentration of the crosslinking agent. PDI also related to the saturation of the gel fraction at high concentration of the crosslinking agent. The gel fraction and the degree of swelling could be evaluated from the identical specimen. The degree of swelling largely depended on the PDI of the raw material copolymer, even if the gel fraction was about the same. In addition, it was clarified that the distribution of a molecular weight of 1,000,000 or more increased in the sol of the low equivalent composition of crosslinking agent (ie. 0.001 eq and 0.002 eq.). In the same time, the distribution in the low molecular weight region decreased. It means that the copolymer and the crosslinking agent dimerized first to give a high molecular weight polymer, and then the formation of a crosslink (gel formation) occurred.

Key words : Acrylic copolymer, Pressure sensitive adhesive, Molecular weight, Poly-dispersity index,
Gel fraction, Sol

(Received : July 22, 2019)