

## 아미노실록산이 그래프팅된 폴리(이미드실록산) 공중합체 제조와 필름 모폴로지 및 점착 특성 연구

이지목 · 권은진 · 이선영 · 정현민<sup>†</sup>

금오공과대학교 응용화학과

(2013년 5월 3일 접수, 2013년 5월 23일 수정, 2013년 5월 23일 채택)

### Preparation of Aminosiloxane-grafted Poly(imidesiloxane) Copolymer and its Morphology and Adhesive Properties in Film

Ji Mok Lee, Eunjin Kwon, Sunyoung Lee, and Hyun Min Jung<sup>†</sup>

Department of Applied Chemistry, Kumoh National Institute of Technology, Yangho-dong 1, Gumi 730-701, Korea

(Received May 3, 2013; Revised May 23, 2013; Accepted May 23, 2013)

**초록:** 폴리이미드에 폴리실록산 블록을 포함시키는 형태의 공중합체를 통해 내열 점착특성을 갖는 박막층을 형성하였다. 카르복시기를 포함하는 폴리이미드를 중합하여 디아미노실록산과 반응하면서 필름을 형성하는 제조방법에서 그래프트화 및 가교결합을 형성하였다. 투과전자현미경과 energy dispersive X-ray spectroscopy(EDX)를 통한 모폴로지 조사에서 폴리이미드와 폴리실록산 부분은 각각 100 nm 크기의 구형 도메인과 연속상을 갖는 마이크로 상분리 구조를 갖는 것을 확인하였다. 또한 X-ray photoelectron spectroscopy(XPS) 분석에서는 공기-필름 계면에 폴리실록산 성분이 주로 노출되고 있음이 나타났다. 400 °C까지 내열성을 갖는 폴리(이미드실록산) 박막층은 상온에서 300 °C까지 그 점착 특성이 유지됨을 확인하였다. 폴리이미드의 카르복시기와 아미노실록산의 그래프트화가 마이크로도메인 형성과 점착특성을 나타내는데 중요하게 작용함을 비교실험을 통해 확인하였다.

**Abstract:** Polyimide (PI) containing carboxyl functional group was prepared and reacted with diaminosiloxane during high temperature film casting. The morphology of resulting film was observed by using transmission electron microscopy (TEM) and energy dispersive X-ray spectroscopy (EDX), which revealed that globular 100 nm-sized PI domains and continuous polysiloxane phase were formed. X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) study indicated that air-film interface mainly consisted of polysiloxane blocks. Poly(imidesiloxane) thin layer was thermostable until 400 °C and its pressure-sensitive adhesive property was retained up to 300 °C. The comparative experiments revealed that grafting between carboxyl groups of polyimide and aminosiloxane was crucial for formation of microdomain structure and pressure-sensitive adhesive property.

**Keywords:** polyimide, poly(imidesiloxane), pressure-sensitive adhesion, thermostable, grafting copolymer.

## 서 론

폴리이미드는 고유의 열적, 기계적, 내화학적 우수성으로 인해 중요한 전자재료 소재로서 다양한 연구가 수행되어 왔다. 폴리이미드의 특성에 더하여 마이크로일렉트로닉 분야의 폭넓은 활용을 위해 폴리(이미드실록산)공중합체가 제조되어 연구되어온 바 있으며,<sup>1,4</sup> 이들의 점착 및 점착 소재로서의 활용에 많은 관심을 받고 연구되어 왔다.<sup>5-7</sup> 폴리이미드 기반의 점착 및 점착 소재는 우수한 내열 특성으로 인해 300 °C 이상 수준의 프로세스 환경에서 점착성능이 요구되는 마이크로

일렉트로닉스 공정소재로서 높은 가능성을 갖는다고 할 수 있다.<sup>8-10</sup> 점착소재(pressure-sensitive adhesives) (이하 PSA)의 주요 소재인 아크릴 기반의 고분자 소재는 적정한 범위의 기계적 특성과 조절 가능한 특성 등으로 상업 적용의 많은 부분을 차지하고 있고 매우 다양한 조성과 형태로서 개발이 진행된 바 있다.<sup>11-13</sup> 하지만, 이들의 적용가능 온도 범위는 최대 200 °C 정도로서 아크릴 고유의 한계를 극복하기는 어렵다고 할 수 있다.<sup>11</sup> 이외에 고분자 매트릭스에 점착성분(tackifying resin)을 포함시키는 접근이 일반적이나 단분자 혹은 분자량이 낮은 점착성분은 내열특성이 낮거나 제조공정상의 잔류 오염물로 작용할 가능성이 높은 문제점이 있다. 이러한 점에서 폴리이미드 기반의 폴리(이미드실록산) 공중합체는 내열 PSA로서 마이크로 일렉트로닉스 공정환경에 적합한 소재로

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.  
E-mail: hmjung@kumoh.ac.kr

제시될 수 있다. 영구적인 접착과 높은 접착강도를 요구하는 부분에서는 에폭시와 이들의 공중합체의 소재 개발이 수행되어 왔으나, PSA로서의 특성을 가지면서 내열 특성을 확보하는 면에서는 적용이 어렵다고 할 수 있다.<sup>14</sup> 점착층의 형성 후 라미네이션을 통한 부착과 잔류가 없는 탈착과정이 요구되는 공정이 적용되는 마이크로 일렉트로닉스 이용 분야에서는 고온 점착층 형성 이후 점착특성의 반복적 유지, 약한 점착과 쉬운 탈착 등의 성질이 요구될 수 있다. 이러한 특성의 적합 소재로서 폴리(이미드실록산) 공중합체는 실리콘 부분의 특성을 조절하여 포함하는 접근으로 개발되어 왔고, 그 주된 공중합체 형성방향은 공중합체를 이루는 주사슬에서 디안하이드라이드와 반응하는 디아민과 디아미노실록산의 비율을 조절하여 공중합체를 형성하는 방법을 사용한다.<sup>5,15</sup>

본 연구에서는 그래프트 공중합체를 형성하여 블록화된 이미드부분과 실록산 부분을 포함하도록 하고, 마이크로상 분리로부터 점착성을 부여하면서 내열 특성을 확보하는 접근을 시도하였다. 이러한 접근을 위해 카르복시기 작용기를 포함한 폴리이미드를 합성하고 이에 폴리실록산 부분을 연결하고 비율을 조절하면서 특성을 확인하여 점착성과 내열성을 갖춘 소재를 제조하였다. 박막으로 필름을 제조하여 관찰한 결과 공중합체 층에서 상분리로부터 형성되어 있는 마이크로 도메인을 확인하였다.

## 실 험

**재료.** 4,4-(hexafluoroisopropylidene)diphthalic anhydride (6-FDA), 2,2'-bis(trifluoromethyl)-4,4'-diaminobiphenyl (TFDB) 그리고, 3,5-diaminobenzoic acid (DABA)는 Aldrich사 제품을 구매하여 추가 정제없이 사용하였다. *N,N*-dimethylacetamide (DMAc, 99.9%, Aldrich)는 무수물로 구매하여 질소 환경에서 보관하며 사용하였다. 디아미노실록산은 Dow Corning사의 XIAMETER® OFX-8040 Fluid를 사용하였다.

**카르복시기를 포함하는 폴리이미드 제조.** 질소하에서 TFDB (1.91 g, 5.96 mmol)를 녹인 DMAc 9 mL 용액과 6-FDA (3.31 g, 7.45 mmol)를 녹인 DMAc 10 mL 용액, 그리고, DABA(0.23 g, 1.49 mmol)를 녹인 DMAc 5 mL를 차례로 둥근플라스크에 넣고 질소하에서 0 °C에서 5시간, 상온에서 17시간 교반시키며 반응한다. 얻어진 폴리이미드 용액에 아세트익 안하이드라이드 3.8 g, 피리딘 2.9 g을 차례대로 넣어주고 80 °C에서 24시간 동안 교반한다. 이미드화되어 폴리이미드가 형성된 용액을 증류수가 담긴 비이커에 적가하면서 폴리이미드를 입자 형태로 침전시킨다. 여과하고 증류수로 세척한 후 진공오븐에서 건조한다.

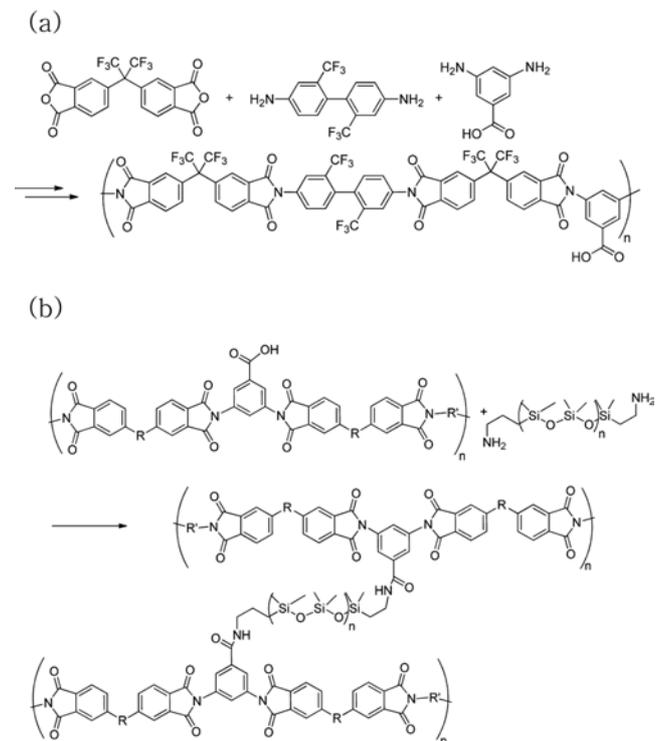
**폴리(이미드실록산) 공중합체 필름 제조.** 제조된 폴리이미드 0.2 g을 넣고 DMAc를 3.5 mL 가하여 교반하며 녹인다. 완전히 녹인 후 디아미노실록산 OFX-8040을 0.4 g 넣어주고

교반한다. 30분 교반 후, 유리판에 용액을 500 μm 두께로 필름 어플리케이션을 사용하여 도포한다. 도포된 유리판은 질소 환경에서 100 °C 30분, 200 °C 1시간, 300 °C 1시간씩 열처리를 하여 폴리(이미드실록산) 공중합 필름층을 제조한다. 점착특성 평가를 위한 필름부착 샘플은 제조된 필름층에 대해 Kapton® 필름을 라미네이션하여 준비한다. Kapton® 필름은 점착면에 대해서 3 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 부착하고 필요한 온도조건으로 처리하여 점착 특성을 파악한다.

**기기 및 분석.** Transmission electron microscopy(TEM) 분석은 JEOL, JEM 2100을 사용하였고, 시편 제작에 사용한 초저온마이크로톰은 Cryo-UM(RMC/PTPC&CRX)을 사용하였다. ATR FTIR 측정은 JASCO/FT IR-6100 기기를 사용하여 수행하였고, 열중량분석(TGA)은 SDT/Q600, TA Instrument를 사용하여 분석하였다. X-ray photoelectron spectroscopy(XPS)는 Kratos, AXIS NOVA를 사용하여 측정하였다. Peel test는 Zwick UTM apparatus를 사용하여 180° peel test를 30 mm/min으로 실시하여 측정하였다.

## 결과 및 토론

**폴리이미드(6-FDA/TFDB/DABA) 합성.** 폴리(이미드실록산) 공중합체 제조를 위한 폴리이미드로서 6-FDA/TFDB/

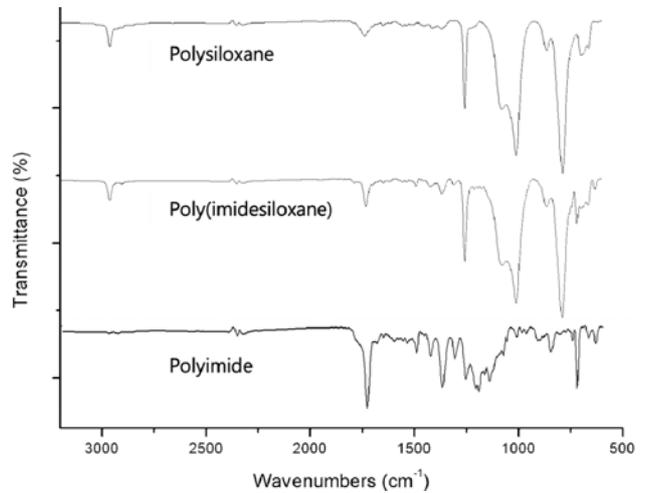


**Scheme 1.** (a) Reaction scheme for polyimide containing carboxyl group; (b) grafting and cross-linking of polyimide with diaminosiloxane (R=hexafluoropropyl, R'=(2,2'-bis(trifluoromethyl)) biphenyl).

DABA 조합으로 합성을 진행하였다. 본 연구에서 제조, 적용하고자 하는 폴리(이미드실록산) 공중합체는 폴리이미드 주사슬에 그래프팅된 형태로 폴리실록산 부분이 연결되어 구성되는 공중합체 형성을 기반으로 한다. 이를 위해 폴리이미드는 아미노실록산과 아미드 결합 반응을 할 수 있는 카르복시기가 도입되도록 단량체를 선택하여 진행하였다. 접착층 형성을 위해 용액공정을 통해 그래프팅이 일어나고 기질 위에 코팅이 이루어질 수 있도록 가용성 폴리이미드를 제조하고자 하였다. 이를 위해 내열 특성이 우수하면서도 유기용매에 대해 용해도가 우수한 6-FDA/TFDB 조합으로 중합을 진행하였다. 카르복시기 도입을 위해 사용한 DABA는 6-FDA 대비 0.2-1 몰비로 적용할 수 있는데, 필름 성형 후 부서지지 않고 안정한 막을 유지하는 성질을 갖게 하기 위해서는 사용량을 0.5 이하로 유지하는 것이 필요하였고 0.2 몰비 수준에서 안정한 막이 형성되는 것을 확인할 수 있었다. 폴리이미드 단량체로 중합한 이후 피리딘과 아세트산아이드라이드 조건에서 이미드화를 진행시켜 얻게 된 폴리이미드(Scheme 1 (a))는 THF, DMF, DMAc 등의 유기용매에 용해되는 특성을 나타내었다. 제조된 폴리이미드는 THF 용매 조건에서 폴리스티렌 스탠다드를 이용한 GPC 분석으로 수평균 분자량 25000임을 확인하였다.

**폴리(이미드실록산) 공중합체 제조 및 특성.** 폴리(이미드실록산) 공중합체는 디아미노실록산과 폴리이미드에 포함된 카르복시기의 아미드 결합 형성 반응을 통해 그래프팅된 형태로 제조가 진행되었다. DABA 부분에 포함된 카르복시기는 아미노실록산의 아민기와 300 °C 온도 조건에서 축합되며 아미드 결합을 형성하게 된다. 사용된 폴리(아미노실록산)은 THF 용액에서 폴리스티렌 스탠다드로부터 수평균 분자량 60000으로 GPC를 통해 측정되는데, 디아미노기로부터 폴리이미드 주사슬에 그래프팅되면서 가교결합을 형성하게 된다. 가교결합을 통해 형성되는 공중합체는 유기용매에 대한 내화학성에서 큰 변화를 나타내었다. 즉, 순수한 폴리이미드 필름이나 도포된 폴리실록산 막은 THF, 클로로포름, DMF, DMAc의 유기용매에 의해 용해되고 수 분 이내의 접촉에도 표면이 쉽게 변화되는 양상을 나타낸다. 하지만, 폴리(이미드실록산) 공중합체 형성 이후의 필름은 수십 분의 장시간 노출에도 표면 변화가 나타나지 않는 결과를 보이며, 가교결합의 형성 효과를 확인할 수 있다. ATR-FTIR을 통한 필름 표면분석에서 실록산 부분과 폴리이미드에서 나타나는 주요 스트레칭 흡광을 확인할 수 있다. 1737 cm<sup>-1</sup>에서 이미드 카르보닐 스트레칭이 관찰되고, 이와 함께 1257과 1081 cm<sup>-1</sup>에서 실록산의 특징적인 Si-C, Si-O 스트레칭이 각각 관찰된다. ATR-FTIR의 특성상 0.5-1 μm 두께의 영역에 대한 흡광 특성이 나타나는 점을 고려하면 이 두께 영역에 대해서는 두 성분이 고르게 분포되고 있음을 파악할 수 있다(Figure 1).

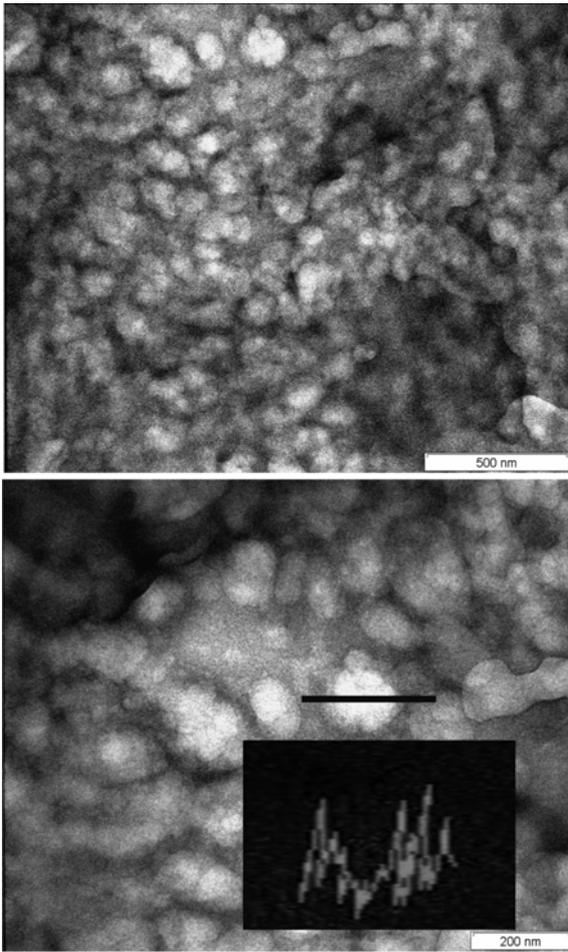
폴리이미드에 대한 아미노실록산의 첨가 비율은 무게비



**Figure 1.** IR spectra for the analysis of the surface of poly(imidesiloxane) copolymers.

1:2-1:4 범위에서 조절하여 제조하였다. 이 범위의 아미노실록산은 분자량 60000 정도를 감안했을 때 반응하는 카르복시기에 대해서 매우 적은 몰비율이며 아민 말단은 모두 아미드 형성 반응에 참여했을 것으로 여겨진다. 이 무게비 범위의 아미노실록산-폴리이미드 혼합 DMAc 용액은 초기 혼합 시에 균일상을 유지하지만 수시간의 경과후 상분리가 진행되는 양상을 보인다. 이 혼합용액을 유리기관상에 도포하고 100에서 300 °C에 이르는 단계적 가열 조건으로 처리하면 헤이즈 박막을 형성하게 된다. 박막화 과정에서 *in-situ* 아미드 결합 반응에 의한 그래프팅과 가교결합 형성에 따라 나타나는 상분리와 이에 따른 마이크로 도메인을 관찰하고자 하였다. 일차적으로 광학현미경 상에서 관찰되는 수 마이크론 크기 범위에서는 상분리에 의한 도메인 형성이 관찰되지 않았다. 마이크로미터 크기 이하의 미세한 상분리와 이로부터의 도메인 형성을 관찰하기 위해서 박막에 대해 I<sub>2</sub>로 스테이닝(staining) 처리를 하고 이를 초저온마이크로톰(cryomicrotome)으로 TEM 시료를 준비하여 관찰하였다.

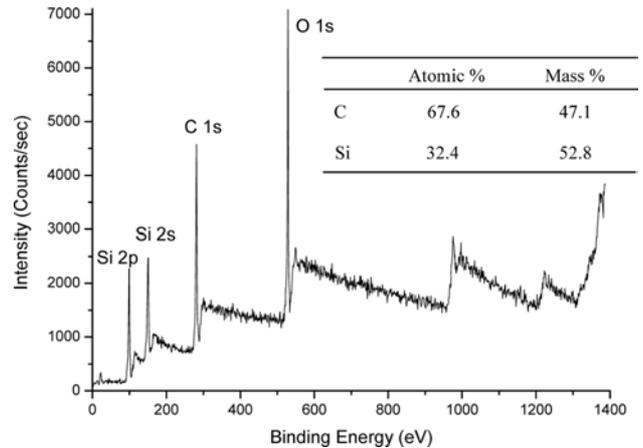
TEM에서 관찰되는 이미지에서는 박막 전 영역에 걸쳐 고르게 형성되어 있는 크기 100-150 μm 범위의 구형 도메인을 관찰할 수 있었다. 준비된 TEM 시료는 박막의 절단면에 대해서 마이크로톰하여 얻은 것이므로, 이러한 상분리 도메인의 형성이 표면에 국한된 것이 아닌 박막 내부 전체에 걸쳐 이루어져 있음을 파악할 수 있다. 구형으로 이루어진 도메인과 이를 둘러싼 상에 대한 조사를 EDX 분석을 통해 수행하였다. Figure 2에서 TEM 이미지 상에서 구형 도메인의 지름 부분을 따라 얻은 Si에 대한 상대적인 함량분석에서 Si의 분포는 구형 도메인의 내부 부분에서는 상대적으로 낮아지는 Si의 분포를 확인할 수 있다(이미지의 inset에서 Si의 상대적 함량을 나타내고 있다). 이러한 결과로부터 구형 도메인 내부는 Si를 포함하지 않은 상이며, 즉 폴리이미드 부분이 상



**Figure 2.** TEM image and EDX analysis of poly(imidesiloxane) film: The sample was prepared through cryomicrotoming the fractured section of the film after  $I_2$  staining.

분리되어 형성되고 있음을 파악할 수 있다. 결과적으로 높은 Si 분포를 보이는 구형 도메인을 둘러싼 연속상에 폴리실록산이 상분리되어 형성되고 있음을 알 수 있다. 이는 순수한 폴리실록산과 폴리이미드를 각각 박막화하고 이에 대한  $I_2$ 의 스테이닝을 하여 관찰한 결과에서 다시 확인할 수 있었는데, 폴리실록산 부분에 선택적으로  $I_2$ 의 스테이닝이 빠르게 이루어지는 결과를 관찰할 수 있었다. 이는 TEM 이미지에 질게 나타나는 스테이닝된 부분이 폴리실록산 부분으로 이루어지는 상으로 관찰되는 결과와 잘 일치하고 있다.

폴리(이미드실록산) 박막 형성에서 상부 표면층에 대한 상태를 파악하고자 XPS 분석을 수행하였다. TEM 관찰에서는 박막 상하부 전반에 걸쳐 고르게 폴리이미드 구형 도메인의 형성과 폴리실록산 부분의 연속상 형성이 확인되었으나, 필름 형성 시의 공기-용액 계면에서 나타나는 상에 대한 정보를 파악하기는 어려웠다. 필름에 대한 XPS 분석에서는 전형적인 폴리실록산의 스펙트럼이 관찰되었으며, 특히 정량적 분



**Figure 3.** XPS analysis for poly(imidesiloxane) film and quantitative estimation for C and Si contents.

석에서 C와 Si의 상대적인 함량 비에서 순수한 폴리실록산이 갖는 2:1의 C와 Si의 비율을 나타내었다(Figure 3). 즉, 순수한 폴리실록산의 2:1 C/Si 원자비율에서 폴리이미드의 포함에 따른 방향족 고리 부분의 증가에 따라 C의 비율이 높아지는 것을 예상할 수 있는데, 분석결과 68%와 32%의 C, Si 원자 함량비를 보였고 이는 2.1:1의 비율로 폴리실록산이 표면을 형성하고 있음으로 추정할 수 있다. 일반적으로 XPS에 의한 표면분석이 5 nm 범위 이내의 깊이에 대해 나타나는 것을 감안할 때 공기층 쪽 표면에서 폴리실록산 부분의 도메인이 상분리되어 형성되고 있는 양상을 파악할 수 있다. TEM과 XPS 분석에서 얻어진 결과를 종합하여 박막형성의 과정에서 나타나는 현상을 정리하면, DMAc 용액에서 가열 조건 하에서 용매의 증발과 아마이드 결합이 진행되고 고체상 형성이 나타난다. 이때 폴리이미드 부분과 폴리실록산 부분의 상분리가 필름 전반에 걸쳐 형성되고 구형도메인과 연속상 도메인의 형성이 100 nm 내외의 크기로 진행된다. 용매의 제거와 함께 표면층에서는 폴리실록산 부분이 표면층을 형성하면서 필름을 형성한다.

제조된 폴리(이미드실록산) 공중합 필름에서 나타난 아마이드 결합에 따른 효과를 파악하기 위해서 카르복시기를 포함하지 않는 폴리이미드를 제조하고 이에 대한 특성을 조사하였다. 이를 위해 폴리이미드는 DABA를 제외하고 6-FDA/TFDB 1:1 비율로 폴리이미드를 중합하여 폴리이미드를 제조하였다. 동일한 방법으로 아민기를 갖는 폴리실록산과 혼합 용액을 준비하여 300 °C까지의 가열 조건으로 필름을 캐스팅하였다. 이 경우 용액에서 균일상이 형성되지 않고 상분리가 나타나는 현상을 보였고, 캐스팅된 필름으로부터 폴리이미드 부분과 폴리실록산이 분리되어 형성되는 결과를 나타내었다. 이로부터 화학결합을 통해 그래프팅된 공중합체 형성조건이 마이크로 도메인 형성에 중요한 작용을 함을 파악할 수 있다. 이러한 폴리이미드 조성에 따른 영향은 형성된 필름층의 점

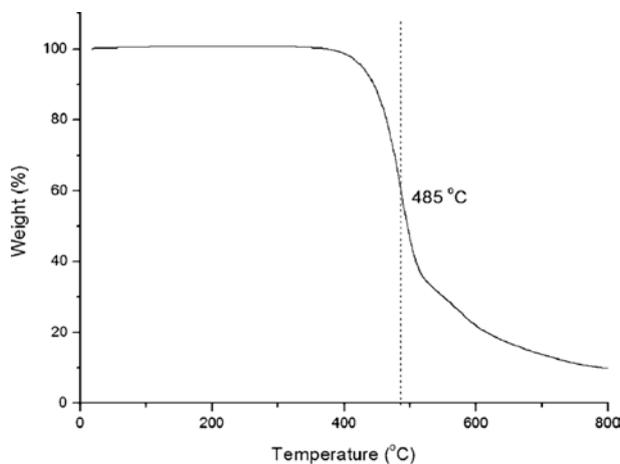
**Table 1. Various Combination of Polyimide-Siloxane**

PI	Weight ratio of PI/Polysiloxane	Adhesive property (g/inch)	Phase separation
6-FDA/ TFDB/DABA	1:2	12	Microdomain
	1:4	9	Microdomain
	<1:6	N/A	Liquid polysiloxane phase
6-FDA/TFDB	1:2	N/A	Liquid polysiloxane phase
6-FDA/ ODA/DABA	1:2	N/A	Bulk separation
PMDA/TFDB/ DABA	1:2	N/A	Bulk separation

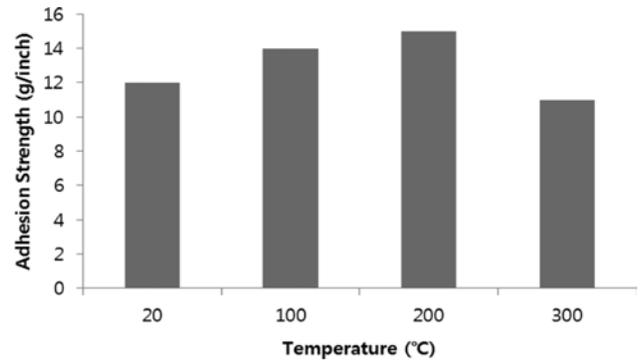
착 특성에도 영향을 주게 되며 그 결과를 Table 1에 정리하였다.

**폴리(이미드실록산) 필름 특성.** 폴리(이미드실록산) 박막에 대한 내열 특성을 TGA 분석을 통해 확인하였다. 열분해는 407 °C에서 시작되는 결과를 보여 6-FDA/TFDB 조성의 폴리이미드에서 나타나는 열분해 양상과 거의 동일한 결과를 나타내었다. PDMS의 일반적인 열분해 온도가 400 °C 전후로 나타나는 점을 감안할 때 두 성분의 조합은 고내열 접착층 형성에 우수하게 적용될 수 있음을 나타내고 있다(Figure 4).

제조된 폴리(이미드실록산) 공중합체 필름에 대한 접착층으로서의 적용 특성을 조사하였다. 본 연구에서 활용하고자 하는 접착특성은 접착층을 우선 형성하고 상부 부착 필름의 라미네이션 이후 탈착(debonding)되는 특성을 조사하였다. 이는 디스플레이 부품 제조를 포함하는 대면적 회로소자 제조 공정에서 유기기판 소재를 적용하는 과정에서 나타날 수 있



**Figure 4.** TGA thermogram of poly(imidesiloxane) copolymer.



**Figure 5.** Peel strength of Kapton® film-attached PSA layer depending on temperature.

는 공정상의 접착 특성을 조사하기 위한 것으로 이전의 강한 기계적 강도의 접착 및 접착 특성보다는 기질의 임시적 고착 (temporary immobilization) 특성을 부여하는 것이라 할 수 있다. 접착층 상부의 라미네이션 필름은 Kapton® 필름을 사용하여 3 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 부착시킨 후 각 온도 조건에서 30 분 경과 후 탈착되는 특성을 확인하였다. 각종 디스플레이 및 회로기판 소재의 제조 공정에서 요구되는 300 °C 까지의 접착 특성 비교에서 제조된 폴리(이미드실록산) 필름층은 상온 및 100-300 °C 온도 구간에서 큰 변화 없이 12 g/inch 수준에서 ±3 g/inch 정도의 적은 변화만을 나타내어 내열 접착소재로서의 우수한 특성을 보였다(Figure 5).

6-FDA/TFDB/DABA 조합의 폴리이미드와 이로부터 그래프팅되어 공중합되는 폴리실록산의 조합은 폴리이미드/폴리실록산 중량비율 1:2-1:4까지 그 접착 특성과 필름의 마이크로 상분리 도메인이 유지되는 결과를 보였다. 그 이상의 폴리실록산의 첨가는 제조 필름의 상분리가 나타나는 결과를 보였다. 필름의 상분리는 유동성 액체인 폴리실록산이 고체화된 필름층을 이루지 못하고 필름 표면 및 분리된 영역에 나타나는 것을 의미한다. 한편, 폴리이미드와 폴리실록산 부분이 그래프팅되는 효과는 매우 중요하게 작용하여 앞서 설명한 바와 같이 DABA가 없는 조성으로 폴리이미드를 제조하여 적용한 결과에서도 필름자체의 상분리가 나타났다. 이와 함께, 폴리이미드를 제조하는 단량체 조성도 접착특성을 나타내는데 중요하게 작용하는 결과를 보였다. 즉, DABA를 포함하더라도 TFDB 대신 4,4'-oxydianiline(ODA)을 디아민 단량체로 사용한 경우에는 이러한 접착 특성을 잃어버리는 결과를 보였고, 6-FDA 대신 pyromellitic dianhydride(PMDA)를 디안하이드라이드 단량체로 적용한 결과에서도 접착 성능이 나타나지 않았다(Table 1). 이러한 결과에서, 불소화된 폴리이미드 부분과 폴리실록산 부분이 각각 적절한 용해도 특성과 상용성을 보이면서 필름화 과정에서 마이크로 도메인을 형성하는 모폴로지 구현이 접착성질을 부여하는데 중요하게 작용하고 있음을 확인할 수 있다.

## 결 론

본 연구에서는 폴리이미드와 폴리실록산을 그래프팅 방법으로 연결시키면서 가교결합된 공중합체를 합성하고 이를 통해서 내열특성과 함께 점착특성을 갖는 필름층을 제조하였다. 카르복시기를 갖는 폴리이미드는 디아미노실록산과 고온 필름 형성 과정 중에서 아마이드 결합을 통해 그래프트될 수 있으며 결과로 나타나는 공중합 필름층은 100 nm 크기의 구형의 폴리이미드 도메인과 연속상의 폴리실록산 상을 갖는 마이크로상 분리 구조를 형성하였다. 또한 공기-필름 계면에서는 폴리실록산 도메인이 주로 분포되는 특성이 관찰되었으며 이러한 구조의 모폴로지를 통해 내열특성을 가지면서 300 °C 고온에서도 점착특성을 유지하는 특성을 갖는 폴리(이미드실록산) 공중합체 필름층을 제조할 수 있었다.

**감사의 글:** 이 연구는 금오공과대학교학술연구비에 의하여 지원된 논문임.

## 참 고 문 헌

1. J. L. Hedrick, H. R. Brown, W. Volksen, M. Sanchez, C. J. G. Plummer, and J. G. Hilborn, *Polymer*, **38**, 605 (1997).
2. T. H. Yoon, C. A. Arnold-McKenna, and J. E. McGrath, *J. Adhes.*, **39**, 15 (1992).
3. H. Z. Zhuang, J. A. Gardella, J. A. Incavo, S. R. Rojstaczer, and J. C. Rosenfeld, *J. Adhes.*, **63**, 199 (1997).
4. W. Volksen, J. L. Hedrick, T. P. Russell, and S. Swanson, *J. Appl. Polym. Sci.*, **66**, 199 (1997).
5. J. Zhao, S. R. Rojstaczer, J. Chen, M. Xu, and J. A. Gardella, *Macromolecules*, **32**, 455 (1999).
6. S. Rojstaczer, U.S. Patent 5,209,981 (1991).
7. Y. Yamada and N. Furukawa, *Polym. J.*, **29**, 923 (1997).
8. K. Kunimune, Y. Soeda, S. Itami, and K. Kikuta, U.S. Patent 5,300,627 (1994).
9. U. Park, J. Y. Park, J. Y. Kim, Y. S. Kim, J. H. Ryu, and J. C. Won, *Polymer(Korea)*, **35**, 302 (2011).
10. M. B. Saeed and M.-S. Zhan, *Int. J. Adhes. Adhes.*, **27**, 9 (2007).
11. J. Guo, S. J. Severtson, and L. E. Gwin, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **46**, 2753 (2007).
12. Z. Czech, *J. Appl. Polym. Sci.*, **97**, 886 (2005).
13. W. Gruber, J. Galinke, and B. Wegemund, U.S. Patent 4,107,386 (1977).
14. F. Ohmori, Y. Wada, M. Yuasa, K. Wada, M. Shimode, K. Nakajima, and M. Ohkubo, U.S. Patent 5,677,393 (1997).
15. R. Chavez, E. Ionescu, C. Fasel, and R. Riedel, *Chem. Mater.*, **22**, 3823 (2010).