

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(21) **201691318** (13) **A1**

**(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОЙ ЗАЯВКЕ**

(43) Дата публикации заявки  
**2016.11.30**

(22) Дата подачи заявки  
**2015.01.22**

(51) Int. Cl. **C08L 53/02** (2006.01)  
**C08F 8/04** (2006.01)  
**C09J 11/06** (2006.01)  
**C09J 11/08** (2006.01)  
**C09J 107/00** (2006.01)  
**C09J 109/00** (2006.01)  
**C09J 125/00** (2006.01)  
**C09J 153/02** (2006.01)

---

**(54) БЛОК-СОПОЛИМЕР И КЛЕЕВАЯ КОМПОЗИЦИЯ**

---

(31) **2014-010803**

(32) **2014.01.23**

(33) **JP**

(86) **PCT/JP2015/051735**

(87) **WO 2015/111675 2015.07.30**

(71) Заявитель:

**АСАХИ КАСЕИ КАБУСИКИ  
КАЙСЯ; ДЖАПАН ЭЛАСТОМЕР  
КО., ЛТД. (JP)**

(72) Изобретатель:

**Накатани Косукэ, Араки Йосифуми,  
Сибуя Кента, Хисасуэ Такахиро,  
Моритоу Казуо (JP)**

(74) Представитель:

**Медведев В.Н. (RU)**

(57) Предлагается блок-сополимерная композиция, содержащая 20 мас.% и более и 90 мас.% и менее компонента (А) и 10 мас.% и более и 80 мас.% и менее компонента (В), где компонент (А) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок, в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок, в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднюю молекулярную массу, составляющую 30000 и более и 190000 и менее; и компонент (В) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок в основном содержащий звено винилароматического мономера и полимерный блок, в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднюю молекулярную массу, составляющую 60000 и более и 500000 и менее, где степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А) и компоненте (В) находится в диапазоне от 10 до 80 мол.% при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А) и компоненте (В); и соотношение между средней молекулярной массой компонента (В) и средней молекулярной массой компонента (А) находится в диапазоне от 1,3 до 10.

**A1**

**201691318**

**201691318**

**A1**

**БЛОК-СОПОЛИМЕР И КЛЕЕВАЯ КОМПОЗИЦИЯ****Область техники, к которой относится изобретение**

[0001]

Настоящее изобретение относится к блок-сополимеру и клеевой композиции, использующей его.

**Уровень техники**

[0002]

В последние годы с точек зрения экономии энергии, экономии ресурсов, уменьшения нагрузки на окружающую среду и тому подобного широко использовали термоплавкие вязкие клеи; и в качестве полимеров основы для термоплавких вязких клеев широко используют блок-сополимеры на основе винилароматического мономера-сопряженного диенового мономера (например, сополимеры SBS; блок-сополимеры стирола-бутадиена-стирола и тому подобное). Однако, клеевые композиции, полученные при использовании данных блок-сополимеров, характеризуются недостаточным балансом между удерживающей способностью, клейкостью и прочностью склеивания, и их было желательно улучшить.

[0003]

В рамках способов их улучшения, например, в источнике патентной литературы 1 раскрывается клеевая композиция, образованная из трехблочного сополимера и двухблочного сополимера. Кроме того, в источнике патентной литературы 2 раскрывается клеевая композиция, образованная из блок-сополимера, полученного в результате проведения реакции сочетания со специфическим двухфункциональным агентом реакции сочетания (специфическим дигалогеновым соединением).

[0004]

Кроме того, в источнике патентной литературы 3 раскрывается клеевая композиция, образованная из блок-сополимера, полученного в результате гидрирования в специфической степени блок-сополимера винилароматического мономера и сопряженного диенового мономера.

**Перечень цитирования**

**Патентная литература**

[0005]

Источник патентной литературы 1: японский выложенный патент № S61-278578

Источник патентной литературы 2: японский выложенный патент № S63-248817

Источник патентной литературы 3: японский выложенный патент № H05-98130

**Сущность изобретения****Техническая проблема**

[0006]

Однако, также и в технологиях, обычно предлагаемых в соответствии с представленным выше описанием изобретения, эффект улучшения удерживающей способности, клейкости и прочности склеивания все еще является недостаточным, а также недостаточным является баланс между адгезионной способностью, характеристиками низкой вязкости и способностью загрязнения склеиваемых материалов.

[0007]

Настоящее изобретение было сделано при рассмотрении вышеупомянутой проблемы и имеет своей целью предложение блок-сополимерной композиции для преобразования в клеевую композицию, характеризующуюся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью и демонстрирующую превосходный баланс между адгезионной способностью, характеристиками низкой вязкости и способностью загрязнения склеиваемых материалов, и клеевой композиции, содержащей блок-сополимерную композицию.

**Решение проблемы**

[0008]

В результате проведения исчерпывающих исследований, направленных на разрешение вышеупомянутых обычных проблематичных моментов, изобретатели настоящего изобретения обнаружили то, что вышеупомянутые обычные технические проблемы может разрешить клеевая композиция, содержащая гидрированную блок-сополимерную композицию, обладающую специфической

структурой, и вещество, повышающее клейкость, в соответствующих предварительно определенных количествах, и данное открытие привело к совершению настоящего изобретения.

[0009]

То есть, настоящее изобретение представляет собой нижеследующее.

[1]

Блок-сополимерная композиция, содержащая 20% (масс.), и более, и 90% (масс.), и менее компонента (А), и 10% (масс.), и более, и 80% (масс.), и менее компонента (В),

где компонент (А) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую 30000 и более, и 190000 и менее; и

компонент (В) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую 60000 и более, и 500000 и менее,

где степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) находится в диапазоне от 10 до 80% (моль.) при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В); и

соотношение между среднемассовой молекулярной массой компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) находится в диапазоне от 1,3 до 10.

[2]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая приведенной выше позиции [1], где уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) до гидрирования составляет 5% (моль.), и более, и менее, чем 30% (моль.), при расчете на совокупное количество

звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В).

[3]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая приведенным выше позициям [1] или [2], где компонент (В) содержит блок-сополимер, содержащий, по меньшей мере, два полимерных блока (Ar) и, по меньшей мере, один полимерный блок (D).

[4]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [3], где среднемассовая молекулярная масса компонента (В) составляет 100000, и более, и 500000, и менее.

[5]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [4], где компонент (В) содержит блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами Ar-D-Ar, (Ar-D)<sub>2</sub>X, D-Ar-D-Ar и/или (D-Ar-D)<sub>2</sub>X (где X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации).

[6]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [4], где компонент (В) содержит трехразветвленный блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами (D-Ar-D)<sub>3</sub>-X и/или (Ar-D)<sub>3</sub>-X (где X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации).

[7]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [4], где компонент (В) содержит четырехразветвленный блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами (D-Ar-D)<sub>4</sub>-X и/или (Ar-D)<sub>4</sub>-X (где X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации).

[8]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [5] до [7], где агент реакции

сочетания включает безгалогенный агент реакции сочетания.

[9]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [8], где уровень содержания звеньев винилароматического мономера составляет 5% (масс.), и более, и менее, чем 35% (масс.), при расчете на 100% (масс.) компонента (А), и компонента (В).

[10]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [9], где уровень содержания звеньев винилароматического мономера составляет 5% (масс.), и более, и менее чем 30% (масс.), при расчете на 100% (масс.) компонента (А), и компонента (В).

[11]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [10], где уровень содержания звеньев винилароматического мономера составляет 5% (масс.), и более, и менее, чем 20% (масс.), при расчете на 100% (масс.) компонента (А), и компонента (В).

[12]

Клеевая композиция, содержащая:

100 массовых частей блок-сополимерной композиции, соответствующей любой одной из приведенных выше позиций от [1] до [11];

от 1 до 600 массовых частей вещества, придающего клейкость; и

от 0 до 200 массовых частей мягчителя.

[13]

Клеевая композиция, соответствующая приведенной выше позиции [12], где уровень содержания вещества, придающего клейкость, находится в диапазоне от 50 до 400 массовых частей.

[14]

Клеевая композиция, соответствующая приведенным выше позициям [12] или [13], содержащая, кроме того, винилароматический эластомер.

[15]

Клеевая композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [12] до [14], содержащая, кроме того, каучук сопряженного диена.

[16]

Клеевая композиция, соответствующая любой одной из приведенных выше позиций от [12] до [15], содержащая, кроме того, натуральный каучук.

Выгодные эффекты от изобретения

[0010]

Настоящее изобретение может предложить блок-сополимерную композицию для преобразования в клеевую композицию, характеризующуюся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью, демонстрирующую превосходные вязкостную адгезионную способность и характеристики низкой вязкости и обнаруживающую малую способность загрязнения склеиваемых материалов, и клеевую композицию, содержащую блок-сополимерную композицию.

Описание варианта осуществления

[0011]

Ниже в настоящем документе будет подробно описываться один вариант осуществления (ниже в настоящем документе называемый «настоящим вариантом осуществления») настоящего изобретения. Настоящее изобретение следующим далее вариантом осуществления не ограничивается, и в объеме его сущности могут быть сделаны различные изменения и модификации.

[0012]

В нижеследующем изложении составляющее структуру звено, образующее полимер, называют «... мономерным звеном»; а в том случае, в котором составляющее структуру звено описывается как вещество полимера, термин «звено» опускается, и составляющее структуру звено описывается просто как «... мономер».

[0013]

[Блок-сополимерная композиция]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая настоящему варианту изобретения, содержит:

20% (масс.), и более, и 90% (масс.), и менее, компонента

(А), и 10% (масс.), и более, и 80% (масс.), и менее, компонента (В),

где компонент (А) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar) (ниже в настоящем документе представляемый как «Ar» в некоторых случаях), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D) (ниже в настоящем документе представляемый как «D» в некоторых случаях), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую 30000, и более, и 190000, и менее; и

компонент (В) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую 60000, и более, и 500000, и менее,

где степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) находится в диапазоне от 10 до 80% (моль.) при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В); и

соотношение между среднемассовой молекулярной массой компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) находится в диапазоне от 1,3 до 10.

[0014]

В том случае, в котором в блок-сополимере компонента (А) и/или компонента (В) присутствует множество каждого из полимерных блоков (Ar) и/или полимерных блоков (D), среднемассовые молекулярные массы, составы и структуры полимерных блоков (Ar), и полимерных блоков (D) могут быть идентичными или различными.

[0015]

В настоящем описании изобретения термин «в основном содержащий звено винилароматического мономера» обозначает то, что уровень содержания звена винилароматического мономера составляет 60% (масс.), и более, предпочтительно 80% (масс.), и

более, более предпочтительно 90% (масс.), и более, а еще более предпочтительно 95% (масс.), и более, при расчете на 100% (масс.) полимерного блока (Ar).

[0016]

Кроме того, в настоящем описании изобретения термин «в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера» обозначает то, что уровень содержания звена сопряженного диенового мономера составляет 60% (масс.), и более, предпочтительно 80% (масс.), и более, более предпочтительно 90% (масс.), и более, а еще более предпочтительно 95% (масс.), и более, при расчете на 100% (масс.) полимерного блока (D).

[0017]

Что касается уровней содержания компонента (A), и компонента (B), то уровень содержания компонента (A) составляет 20% (масс.), и более, и 90% (масс.), и менее, и уровень содержания компонента (B) составляет 10% (масс.), и более, и 80% (масс.), и менее; предпочтительно уровень содержания компонента (A) составляет 30% (масс.), и более, и 80% (масс.), и менее, и уровень содержания компонента (B) составляет 20% (масс.), и более, и 70% (масс.), и менее; а более предпочтительно уровень содержания компонента (A) составляет 40% (масс.), и более, и 70% (масс.), и менее, и уровень содержания компонента (B) составляет 30% (масс.), и более, и 60% (масс.), и менее, при расчете на совокупное количество компонента (A), и компонента (B). В случае попадания уровней содержания компонента (A), и компонента (B) в пределы вышеупомянутых диапазонов будут получены блок-сополимерная композиция и клеевая композиция, демонстрирующие превосходные как характеристики низкой вязкости расплава, так и адгезионную способность. В частности, в случае уровня содержания компонента (A), составляющего 20% (масс.), и более, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходные клейкость, прочность склеивания и характеристики низкой вязкости расплава.

[0018]

Соотношение между среднemasсовой молекулярной массой

компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) (среднемассовая молекулярная масса компонента (В)/среднемассовая молекулярная масса компонента (А)) составляет 1,3 и более, и 10 и менее, предпочтительно 1,4 и более, и 8,0 и менее, более предпочтительно 1,5 и более, и 6,0 и менее, а еще более предпочтительно 1,6 и более, и 5,0 и менее. В случае попадания соотношения между среднемассовой молекулярной массой компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) в пределы вышеупомянутого диапазона будут получены блок-сополимерная композиция и клеевая композиция, демонстрирующие превосходные характеристики низкой вязкости и адгезионную способность и обнаруживающие малую способность загрязнения склеиваемых материалов. В частности, в случае соотношения между среднемассовой молекулярной массой компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) (среднемассовая молекулярная масса компонента (В)/среднемассовая молекулярная масса компонента (А)), составляющего 10 и менее, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходные характеристики низкой вязкости расплава. Кроме того, в случае соотношения между среднемассовой молекулярной массой компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) (среднемассовая молекулярная масса компонента (В)/среднемассовая молекулярная масса компонента (А)), составляющего 1,3 и более, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, обнаруживающих малую способность загрязнения склеиваемых материалов. Уровни содержания, среднемассовые молекулярные массы и соотношение между среднемассовыми молекулярными массами компонента (А), и компонента (В) могут быть контролируемо выдержаны в вышеупомянутых диапазонах в результате регулирования различных условий способа получения, описываемого ниже. Кроме того, уровни содержания, среднемассовые молекулярные массы и соотношение между среднемассовыми молекулярными массами компонента (А), и компонента (В) могут быть измерены при использовании методов, описанных в примерах, описываемых ниже.

Ниже в настоящем документе каждый компонент будет описываться подробно.

[0019]

[Блок-сополимеры]

(Компонент (А))

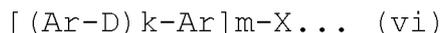
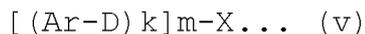
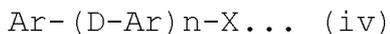
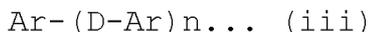
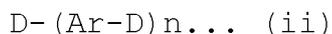
Компонент (А) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую 30000 и более, и 190000 и менее, и содержится в блок-сополимерной композиции в количестве, составляющем 20% (масс.), и более, и 90% (масс.), и менее.

[0020]

Среднемассовая молекулярная масса блок-сополимера компонента (А) составляет 30000 и более, предпочтительно 45000 и более, а более предпочтительно 70000 и более. Кроме того, среднемассовая молекулярная масса блок-сополимера компонента (А) составляет 190000 и менее, предпочтительно 175000 и менее, а более предпочтительно 160000 и менее. В случае попадания среднемассовой молекулярной массы компонента (А) в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью. Кроме того, среднемассовая молекулярная масса компонента (А) составляет 30000 и более, и 190000 и менее, предпочтительно 45000 и более, и 175000 и менее, а более предпочтительно 70000 и более, и 160000 и менее. В случае попадания среднемассовой молекулярной массы компонента (А) в пределы вышеупомянутого диапазона будут получены блок-сополимерная композиция и клеевая композиция, характеризующиеся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью. В данном случае среднемассовая молекулярная масса компонента (А) может быть определена при использовании метода, описываемого в примерах.

[0021]

На структуру компонента (А) особенных ограничений не накладывают, но ее примеры включают следующие далее формулы от (i) до (vi).



где в вышеупомянутых формулах от (i) до (vi) Ar представляет собой полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера; D представляет собой полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера; X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации, такого как полифункциональное литийорганическое соединение; а каждый из m, n и k представляет собой целое число, составляющее 1 и более, предпочтительно целое число в диапазоне от 1 до 6.

[0022]

В числе приведенных выше формул от (i) до (vi) предпочтительным является блок-сополимер, содержащий, по меньшей мере, один полимерный блок (Ar) и, по меньшей мере, один полимерный блок (D); предпочтительным является блок-сополимер, описывающийся, например, как Ar-D, Ar-D-X, D-Ar-X или D-Ar-D; а более предпочтительным является блок-сополимер, содержащий один полимерный блок (Ar), и один полимерный блок (D). В случае наличия у компонента (А) такой структуры вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходные характеристики низкой вязкости расплава, прочности склеивания и клейкости.

[0023]

(Компонент (В))

Компонент (В) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий

среднемассовую молекулярную массу, составляющую 60000 и более, и 500000 и менее, и содержится в блок-сополимерной композиции в количестве, составляющем 10% (масс.), и более, и 80% (масс.), и менее.

[0024]

Среднемассовая молекулярная масса блок-сополимера компонента (B) составляет 60000 и более, предпочтительно 100000 и более, а более предпочтительно 120000 и более. Кроме того, среднемассовая молекулярная масса блок-сополимера компонента (B) составляет 500000 и менее, предпочтительно 475000 и менее, а более предпочтительно 450000 и менее. В случае попадания среднемассовой молекулярной массы компонента (B) в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью. Кроме того, среднемассовая молекулярная масса компонента (B) составляет 60000 и более, и 500000 и менее, предпочтительно 100000 и более, и 500000 и менее, более предпочтительно 150000 и более, и 450000 и менее, а еще более предпочтительно 200000 и более, и 400000 и менее. В случае попадания среднемассовой молекулярной массы компонента (B) в пределы вышеупомянутого диапазона будут получены блок-сополимерная композиция и клеевая композиция, характеризующиеся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью и обнаруживающие малую способность загрязнения склеиваемых материалов. В частности, в случае среднемассовой молекулярной массы компонента (B), составляющей 60000 и более, будут получены блок-сополимерная композиция и клеевая композиция, характеризующиеся превосходной удерживающей способностью, а в случае среднемассовой молекулярной массы компонента (B), составляющей 500000 и менее, будут получены блок-сополимерная композиция и клеевая композиция, демонстрирующие превосходные прочностью склеивания и характеристики низкой вязкости расплава. В данном случае среднемассовая молекулярная масса компонента (B) может быть определена при использовании метода, описываемого в примерах.

[0025]

В данном случае в ходе измерения по методу ГПХ при частичном наложении друг на друга пиков компонента (А), и компонента (В) их среднемассовые молекулярные массы могут быть измерены при использовании метода, описываемого в примерах.

[0026]

На структуру компонента (В) особенных ограничений не накладывают, но ее примеры включают следующие далее формулы от (vii) до (xiii).

(Ar-D)e... (vii)

D-(Ar-D)e... (viii)

Ar-(D-Ar)e... (ix)

[Ar-(D-Ar)g]f-X... (x)

[D-(Ar-D)g]f-X... (xi)

[(Ar-D)g]f-X... (xii)

[(Ar-D)g-Ar]f-X... (xiii)

[0027]

В вышеупомянутых формулах от (vii) до (xiii) Ar представляет собой полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера; D представляет собой полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера; X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации, такого как полифункциональное литийорганическое соединение; а каждый из e, f и g представляет собой целое число, составляющее 1 и более, предпочтительно целое число в диапазоне от 1 до 6.

[0028]

В числе приведенных выше формул от (vii) до (xiii) предпочтительным является блок-сополимер, содержащий, по меньшей мере, два полимерных блока (Ar) и, по меньшей мере, один полимерный блок (D). В случае содержания компонентом (В) таких блок-сополимеров вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходный баланс для адгезионной способности.

[0029]

Кроме того, компонент (В) более предпочтительно содержит

блок-сополимеры, описываемые формулами  $Ar-D-Ar$ ,  $(Ar-D)_2X$ ,  $D-Ar-D-Ar$  и/или  $(D-Ar-D)_2X$ . В случае содержания компонентом (B) таких блок-сополимеров вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходной прочностью склеивания и превосходным балансом между производительностью и адгезионной способностью.

[0030]

Кроме того, компонент (B) более предпочтительно содержит блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами  $(D-Ar-D)_3-X$  и/или  $(Ar-D)_3-X$ . В случае содержания компонентом (B) таких блок-сополимеров вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходной удерживающей способностью и превосходным балансом между адгезионной способностью и характеристиками низкой вязкости расплава.

[0031]

Кроме того, компонент (B) более предпочтительно содержит блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами  $(D-Ar-D)_4-X$  и/или  $(Ar-D)_4-X$ . В случае содержания компонентом (B) таких блок-сополимеров вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходной удерживающей способностью и превосходным балансом между адгезионной способностью и характеристиками низкой вязкости расплава.

[0032]

Уровень содержания звена винилароматического мономера в блок-сополимерной композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, предпочтительно составляет 5% (масс.), и более, более предпочтительно 8% (масс.), и более, а еще более предпочтительно 10% (масс.), и более, при расчете на 100% (масс.) компонента (A), и компонента (B). Кроме того, уровень содержания звена винилароматического мономера в блок-сополимерной композиции предпочтительно составляет менее, чем 35% (масс.), более предпочтительно менее, чем 30% (масс.), а еще более предпочтительно менее, чем 20% (масс.), при расчете на 100% (масс.) компонента (A), и компонента (B). Говоря более

конкретно, уровень содержания звена винилароматического мономера в блок-сополимерной композиции предпочтительно составляет 5% (масс.), и более, и менее, чем 35% (масс.), более предпочтительно 5% (масс.), и более, и менее, чем 30% (масс.), а еще более предпочтительно 5% (масс.), и более, и менее, чем 20% (масс.). В случае попадания уровня содержания звена винилароматического мономера в блок-сополимерной композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, обладающих превосходными клеящими свойствами. В частности, в случае уровня содержания звена винилароматического мономера, составляющего 5% (масс.), и более, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходными пределом прочности при склеивании и удерживающей способностью и обнаруживающих малую способность загрязнения склеиваемых материалов. Кроме того, в случае уровня содержания звена винилароматического мономера, меньшего, чем 35% (масс.), вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходной клейкостью.

[0033]

В данном случае уровень содержания звена винилароматического мономера в блок-сополимерной композиции может быть измерен при использовании метода, описанного в примерах, описываемых ниже.

[0034]

Кроме того, уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) до гидрирования предпочтительно составляет менее, чем 30% (моль.), более предпочтительно менее, чем 28% (моль.), а еще более предпочтительно менее, чем 25% (моль.), при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В). Кроме того, уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера до гидрирования предпочтительно составляет 5% (моль.), и более, более предпочтительно 8% (моль.), и более, еще более

предпочтительно 10% (моль.), и более, кроме того, еще более предпочтительно 12% (моль.), и более, кроме того, еще более предпочтительно 13,5% (моль.), и более, а, кроме того, еще более предпочтительно 15% (моль.), и более, при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В). Говоря более конкретно, уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера до гидрирования предпочтительно составляет 5% (моль.), и более, и менее, чем 30% (моль.), более предпочтительно 8% (моль.), и более, и менее, чем 28% (моль.), а еще более предпочтительно 12% (моль.), и более, и менее, чем 25% (моль.), при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В). В случае попадания уровня содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера в пределы вышеупомянутого диапазона вероятными будут дополнительное улучшение производительности, клейкости и прочности склеивания и большее уменьшение способности загрязнения склеиваемых материалов. В частности, в случае уровня содержания винильных связей, меньшего, чем 30% (моль.), вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, обнаруживающих малую способность загрязнения склеиваемых материалов; а в случае уровня содержания винильных связей, составляющего 5% (моль.), и более, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходные характеристики низкой вязкости расплава.

[0035]

В данном случае «уровень содержания винильных связей» представляет собой долю совокупного молярного количества звеньев сопряженного диенового мономера, включенных в формах связи в виде 1,2-связи и 3,4-связи в компонент (А), и компонент (В), по отношению к совокупному молярному количеству звеньев сопряженного диенового мономера, включенных сюда же в формах связи в виде 1,2-связи, 3,4-связи и 1,4 связи, до гидрирования. Уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного

диенового мономера до гидрирования может быть измерен при использовании анализа спектра ядерного магнитного резонанса (ЯМР), а, говоря конкретно, может быть измерен при использовании метода, описанного в примерах, описываемых ниже.

[0036]

В данном случае доля совокупного молярного количества звеньев сопряженного диенового мономера, включенных в формах связи в виде негидрированной 1,2-связи, гидрированной 1,2-связи, негидрированной 3,4-связи и гидрированной 3,4-связи, по отношению к совокупному молярному количеству звеньев сопряженного диенового мономера, включенных в формах связи в виде негидрированной 1,2-связи, гидрированной 1,2-связи, негидрированной 3,4-связи, гидрированной 3,4-связи, негидрированной 1,4-связи и гидрированной 1,4-связи, после гидрирования является равной уровню содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера. Поэтому уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера может быть измерен при использовании анализа спектра ядерного магнитного резонанса (ЯМР), используя блок-сополимерную композицию после гидрирования.

[0037]

В данном случае, поскольку величины уровня содержания звеньев винилароматического мономера, среднемассовых молекулярных масс компонента (А), и компонента (В), и уровней содержания компонента (А), и компонента (В) получают почти что идентичные значения до и после гидрирования, могут быть использованы значения после гидрирования.

[0038]

На стадии гидрирования гидрированию могут быть подвергнуты сопряженные связи звеньев винилароматического мономера, и с точек зрения удерживающей способности и адгезии степень гидрирования совокупных звеньев винилароматического мономера предпочтительно составляет 30% (моль.), и менее, более предпочтительно 10% (моль.), и менее, а еще более предпочтительно 3% (моль.), и менее.

[0039]

Кроме того, степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в блок-сополимерной композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, предпочтительно составляет 10% (моль.), и более, более предпочтительно 12% (моль.), и более, еще более предпочтительно 15% (моль.), и более, а, кроме того, еще более предпочтительно 18% (моль.), и более, при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В). Кроме того, степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в блок-сополимерной композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, предпочтительно составляет 80% (моль.), и менее, более предпочтительно менее, чем 75% (моль.), еще более предпочтительно 70% (моль.), и менее, а, кроме того, еще более предпочтительно 65% (моль.), и менее, при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В). В случае попадания степени гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся высокой адгезионной способностью и малой способностью загрязнения склеиваемых материалов. В частности, в случае степени гидрирования, составляющей 10% (моль.), и более, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходные удерживающую способность, прочность склеивания, клейкость и характеристики низкой вязкости расплава; и в случае степени гидрирования, составляющей 80% (моль.), и менее, вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, демонстрирующих превосходные удерживающую способность, прочность склеивания, клейкость и характеристики низкой вязкости расплава. В случае степени гидрирования, составляющей 80% (моль.), и менее, вероятной будет хорошая совместимость композиций с полимерами, характеризующимися высокими значениями параметра растворимости, в сопоставлении с тем, что имеет место для полибутадиеновых каучуков, стирол-бутадиеновых каучуков,

блок-сополимеров на основе стирола-бутадиена, ароматических нефтяных углеводородных смол и алифатических нефтяных углеводородных смол, таких как смолы на основе С5/С9 сополимера.

[0040]

Кроме того, степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в блок-сополимерной композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, предпочтительно составляет 10% (моль.), и более, и 80% (моль.), и менее, более предпочтительно 12% (моль.), и более, и менее, чем 60% (моль.), еще более предпочтительно 15% (моль.), и более, и 55% (моль.), и менее, а, кроме того, еще более предпочтительно 18% (моль.), и более, и 50% (моль.), и менее, при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В). В случае попадания степени гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет получение блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходной адгезионной способностью и обнаруживающих малую способность загрязнения склеиваемых материалов.

[0041]

Кроме того, с точки зрения предложения блок-сополимерной композиции и клеевой композиции, характеризующихся превосходной термостойкостью, степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера предпочтительно составляет 60% (моль.), и более, и 80% (моль.), и менее, более предпочтительно 63% (моль.), и более, и 77% (моль.), и менее, а еще более предпочтительно 65% (моль.), и более, и 75% (моль.), и менее, при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В).

[0042]

Степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в блок-сополимерной композиции может быть измерена при использовании метода, описываемого в примерах.

[0043]

[Способ получения блок-сополимерной композиции]

Блок-сополимерная композиция может быть получена в результате последовательного проведения стадии полимеризации для полимеризации, по меньшей мере, сопряженного диенового мономера и винилароматического мономера при использовании литийорганического соединения в качестве инициатора полимеризации в углеводородном растворителе для получения, тем самым, полимера, стадии гидрирования для гидрирования двойных связей звена сопряженного диенового мономера полученного полимера и стадии удаления растворителя для удаления растворителя из раствора, содержащего гидрированный блок-сополимер. В данном случае компонент (А), и компонент (В) могут быть получены отдельно и перемешаны впоследствии или могут быть получены одновременно.

[0044]

В случае одновременного получения компонента (А), и компонента (В) среднемассовые молекулярные массы, соотношение между среднемассовыми молекулярными массами и уровни содержания компонента (А), и компонента (В) могут быть отрегулированы, например, в результате контролируемого выдерживания типа и добавляемого количества агента реакции сочетания, описываемого ниже. Кроме того, среднемассовые молекулярные массы, соотношение между среднемассовыми молекулярными массами и уровни содержания компонента (А), и компонента (В) также могут быть отрегулированы в результате контролируемого выдерживания добавляемого количества и числа раз добавления инициатора полимеризации, описываемого ниже, и дробного добавления инициатора полимеризации множество раз. Кроме того, среднемассовые молекулярные массы, соотношение между среднемассовыми молекулярными массами и уровни содержания компонента (А), и компонента (В) также могут быть отрегулированы в результате контролируемого выдерживания добавляемого количества дезактиватора, описываемого ниже, и однократного проведения стадии дезактивирования и дальнейшего продолжения реакции полимеризации.

[0045]

### Стадия полимеризации

Стадией полимеризации является стадия полимеризации, по меньшей мере, сопряженного диенового мономера и винилароматического мономера при использовании литийорганического соединения в качестве инициатора полимеризации в углеводородном растворителе для получения, тем самым, полимера.

[0046]

### Углеводородный растворитель

В соответствии с представленным выше описанием изобретения на стадии полимеризации используют углеводородный растворитель. На углеводородный растворитель особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают алифатические углеводороды, такие как бутан, пентан, гексан, изопентан, гептан и октан; алициклические углеводороды, такие как циклопентан, метилциклопентан, циклогексан, метилциклогексан и этилциклогексан; ароматические углеводороды, такие как бензол, толуол, этилбензол и ксилол. Углеводородный растворитель может быть использован индивидуально или в виде смеси из двух и более его представителей.

[0047]

### Инициатор полимеризации

На стадии полимеризации в качестве инициатора полимеризации используют, по меньшей мере, литийорганическое соединение. На литийорганическое соединение особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают монолитийорганические соединения, дилитийорганические соединения и полилитийорганические соединения, которые содержат один или несколько атомов лития, связанных в своих молекулах. Говоря более конкретно, примеры литийорганических соединений включают этиллитий, н-пропиллитий, изопропиллитий, н-бутиллитий, втор-бутиллитий, трет-бутиллитий, гексаметилендилитий, бутаденилдилитий и изопрениллитий. Инициатор полимеризации может быть использован индивидуально или в комбинациях из двух и более его представителей.

[0048]

Инициатор полимеризации может быть дробно добавлен в реакционный раствор множество раз. В результате осуществления этого за один раз может быть получена композиция, содержащая множество блок-сополимеров, различающихся по среднемассовой молекулярной массе и структуре.

[0049]

Мономеры, используемые для полимеризации

Сопряженный диеновый мономер представляет собой диолефин, содержащий пару сопряженных двойных связей. На сопряженный диеновый мономер особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают 1,3-бутадиен, 2-метил-1,3-бутадиен (изопрен), 2,3-диметил-1,3-бутадиен, 1,3-пентадиен, 2-метил-1,3-пентадиен и 1,3-гексадиен. В их числе предпочтительными являются 1,3-бутадиен и изопрен. Кроме того, с точки зрения механической прочности более предпочтительным является 1,3-бутадиен. Сопряженный диеновый мономер может быть использован индивидуально или в комбинациях из двух и более его представителей.

[0050]

На винилароматический мономер особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают стирол,  $\alpha$ -метилстирол, п-метилстирол, дивинилбензол, 1,1-дифенилэтилен, N,N-диметил-п-аминоэтилстирол и N,N-диэтил-п-аминоэтилстирол. В их числе с точки зрения экономической эффективности предпочтительным является стирол. Винилароматический мономер может быть использован индивидуально или в комбинациях из двух и более его представителей.

[0051]

Блок-сополимер может содержать мономерные звенья, отличные от звена винилароматического мономера и звена сопряженного диенового мономера; и на стадии полимеризации в дополнение к винилароматическому мономеру и сопряженному диеновому мономеру могут быть использованы другие мономеры, сополимеризуемые с данными мономерами.

[0052]

На стадии полимеризации для целей регулирования скорости полимеризации могут быть использованы контролируемое выдерживание микроструктуры (соотношений между структурами цис, транс и винила) заполимеризованного звена сопряженного диенового мономера, регулирование степени участия в реакции сопряженного диенового мономера и винилароматического мономера и тому подобного, предварительно определенного полярного соединения и рандомизирующего агента.

[0053]

На полярное соединение и рандомизирующий агент особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают простые эфиры, такие как тетрагидрофуран, диэтиленгликольдиметиловый простой эфир и диэтиленгликольдибутиловый простой эфир; амины, такие как триэтиламин и тетраметилэтилендиамин; простые тиоэфиры, фосфины, фосфорамиды, соли алкилбензолсульфоновых кислот и алкоксиды калия или натрия.

[0054]

Агент реакции сочетания

На стадии полимеризации к раствору, содержащему блок-сополимер винилароматического соединения-сопряженного диена, содержащий активные концевые группы, может быть добавлен агент реакции сочетания, представляемый как X в вышеупомянутых формулах от (iv) до (vi), и от (x) до (xiii), таким образом, чтобы функциональная группа агента реакции сочетания составляла бы менее, чем 1 моль-эквивалент по отношению к активным концевым группам.

[0055]

На добавляемый агент реакции сочетания особенных ограничений не накладывают, но может быть использован необязательный двух- и более высокофункциональный агент реакции сочетания. На двухфункциональный агент реакции сочетания особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают двухфункциональные галогенированные силаны, такие как дихлорсилан, монометилдихлорсилан и диметилдихлорсилан; двухфункциональные алкоксисиланы, такие как дифенилдиметоксисилан, дифенилдиэтоксисилан,

дифенилдиметоксисилан и диметилдиэтоксисилан; двухфункциональные галогенированные алканы, такие как дихлорэтан, дибромэтан, метиленхлорид и дибромметан; двухфункциональные галогенированные соединения олова, такие как дихлорид олова, дихлорид монометилолова, дихлорид диметилолова, дихлорид моноэтилолова, дихлорид диэтилолова, дихлорид монобутилолова и дихлорид дибутилолова; и дибромбензол, бензойную кислоту, СО и 2-хлорпропен.

[0056]

На трехфункциональный агент реакции сочетания особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают трехфункциональные галогенированные алканы, такие как трихлорэтан и трихлорпропан; трехфункциональные галогенированные силаны, такие как метилтрихлорсилан и этилтрихлорсилан; трехфункциональные алкоксисиланы, такие как метилтриметоксисилан, фенилтриметоксисилан и фенилтриэтоксисилан; и тому подобное.

[0057]

На четырехфункциональный агент реакции сочетания особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают четырехфункциональные галогенированные алканы, такие как тетрахлорид углерода, тетрабромид углерода и тетрахлорэтан; четырехфункциональные галогенированные силаны, такие как тетрахлорсилан и тетрабромсилан; четырехфункциональные алкоксисиланы, такие как тетраметоксисилан и тетраэтоксисилан; четырехфункциональные галогенированные соединения олова, такие как тетрахлорид олова и тетрабромид олова; и тому подобное.

[0058]

На пяти- и более высокофункциональный агент реакции сочетания особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают 1,1,1,2,2-пентахлорэтан, перхлорэтан, пентахлорбензол, перхлорбензол, октабромдифениловый простой эфир и декабромдифениловый простой эфир. Помимо этого, также могут быть использованы эпоксицированные соевые масла, двух-шестифункциональные соединения, содержащие эпоксидную группу, сложные эфиры карбоновых кислот и поливинильные соединения,

такие как дивинилбензол. Агент реакции сочетания может быть использован индивидуально или в комбинациях из двух и более его представителей.

[0059]

В числе вышеизложенного с точек зрения цветового тона, производительности и малого неблагоприятного воздействия на растения предпочтительными являются безгалогенные агенты реакции сочетания. Кроме того, агент реакции сочетания с точек зрения производительности и малого неблагоприятного воздействия на растения предпочтительно представляет собой соединение, содержащее эпоксидную группу, или алкоксисилан.

[0060]

В соответствии с представленным выше описанием изобретения в случае добавления агента реакции сочетания к раствору, содержащему блок-сополимер винилароматического соединения-сопряженного диена, содержащий активные концевые группы, таким образом, чтобы функциональная группа агента реакции сочетания составляла бы менее, чем 1 моль-эквивалент по отношению к активным концевым группам в части блок-сополимеров в виде блок-сополимера винилароматического соединения-сопряженного диена, содержащего активные концевые группы, активные концевые группы будут связываться друг с другом через остатки агента реакции сочетания. После этого оставшая часть блок-сополимера винилароматического соединения-сопряженного диена, содержащего активные концевые группы, в результате все еще остается в своем непрореагировавшем состоянии. В реакции, использующей такой агент реакции сочетания, в результате регулирования типа и добавляемого количества агента реакции сочетания может быть контролируемо выдержана скорость реакции сочетания.

[0061]

На способ полимеризации, осуществляемый на стадии полимеризации в способе получения полимера, соответствующего настоящему изобретению, особенных ограничений не накладывают, и могут быть использованы хорошо известные способы; и примеры способов включают способы, описанные в японской патентной публикации № S36-19286, S43-17979, S46-32415, S49-36957, S48-

2423, S48-4106 и S56-28925, японском выложенном патенте № S59-166518 и S60-186577 и тому подобном.

[0062]

Дезактиватор

На стадии полимеризации может быть добавлен дезактиватор. На дезактиватор особенных ограничений не накладывают, но известны вода, спирты и тому подобное. В их числе с точки зрения эффективности дезактивирования предпочтительными являются спирты. Дезактиватор может быть добавлен на стадии полимеризации при любом хронометраже. В случае добавления дезактиватора в количестве, меньшем, чем 100% (моль.) активных концевых групп, после добавления дезактиватора могут быть, кроме того, последовательно добавлены сопряженный диеновый мономер и/или винилароматический мономер. В результате осуществления этого продолжится реакция полимеризации между активными концевыми группами, не подвергнутыми дезактивированию, и сопряженным диеновым мономером и/или винилароматическим мономером, и может быть получен полимерный раствор, содержащий полимеры, имеющие различные молекулярные массы.

[0063]

Кроме того, на стадии дезактивирования уровни содержания компонента (А), и компонента (В) могут быть контролируемо выдержаны в результате регулирования добавляемого молярного количества дезактиватора по отношению к добавляемому количеству инициатора полимеризации. Вероятным является то, что чем большим будет молярное количество добавляемого дезактиватора, тем более высоким станет уровень содержания компонента (А); и чем меньшим будет молярное количество добавляемого дезактиватора, тем меньшим станет уровень содержания компонента (В).

[0064]

Кроме того, в результате добавления сопряженного диенового мономера и/или винилароматического мономера после добавления дезактиватора и продолжения реакции полимеризации могут быть контролируемо выдержаны среднемассовые молекулярные массы

компонента (А), и компонента (В), и соотношение между среднемассовыми молекулярными массами. Говоря конкретно, вероятным является то, что чем большим будет количество сопряженного диенового мономера и/или винилароматического мономера, добавляемых после добавления дезактиватора, тем большей станет среднемассовая молекулярная масса компонента (В), а также вместе с этим тем большим станет соотношение среднемассовых молекулярных масс.

[0065]

#### Стадия гидрирования

Стадией гидрирования является стадия превращения полимера, полученного на стадии полимеризации, в гидрированное вещество в результате проведения реакции гидрирования двойных связей, по меньшей мере, в сопряженном диеновом мономере полимера. Говоря конкретно, в результате гидрирования полимера в неактивном растворителе в присутствии катализатора гидрирования может быть получен раствор гидрированного блок-сополимера. В данное время степень гидрирования блок-сополимера может быть контролируемо выдержана в результате регулирования температуры реакции, времени реакции, количества подаваемого водорода, количества катализатора и тому подобного.

[0066]

На катализатор, используемый в реакции гидрирования, особенных ограничений не накладывают, но, например, известны гетерогенные катализаторы, относящиеся к типу с нанесением на носитель, у которых металл, такой как Ni, Pt, Pd или Ru наносят на носитель, такой как углерод, диоксид кремния, оксид алюминия или диатомовая земля, так называемые катализаторы Циглера, у которых используют органическую соль или ацетилацетоновую соль Ni, Co, Fe, Cr и тому подобного совместно с восстановителем, таким как алюминийорганическое соединение, так называемые органические комплексные катализаторы, такие как металлоорганические соединения Ru, Rh и тому подобного, и гомогенные катализаторы, у которых используют титаноценовое соединение совместно с литийорганическим соединением, алюминийорганическим соединением, магнийорганическим

соединением и тому подобным в качестве восстановителя. В их числе с точки зрения экономической эффективности, характеристик окрашивания полимера или прочности адгезии предпочтительными являются гомогенные катализаторы, у которых используют титаноценовое соединение совместно с литийорганическим соединением, алюминийорганическим соединением, магнийорганическим соединением и тому подобным в качестве восстановителя.

[0067]

Температура реакции гидрирования предпочтительно находится в диапазоне от 0 до 200°C, а более предпочтительно от 30 до 150°C. Давление водорода, используемого в реакции гидрирования, предпочтительно находится в диапазоне от 0,1 до 15 МПа, более предпочтительно от 0,2 до 10 МПа, а еще более предпочтительно от 0,3 до 5 МПа. Кроме того, время реакции гидрирования предпочтительно находится в диапазоне от 3 минут до 10 часов, а более предпочтительно от 10 минут до 5 часов. В данном случае реакцией гидрирования может быть любой представитель, выбираемый из периодического способа, непрерывного способа или их комбинации.

[0068]

На способ гидрирования особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают способы, описанные в японской патентной публикации № S42-8704, S43-6636, S63-4841 и S63-5401.

[0069]

С точки зрения высокой активности при гидрировании реакцию гидрирования несмотря на отсутствие накладываемых особенных ограничений предпочтительно проводят после описываемой ниже стадии дезактивирования активных концевых групп полимера.

[0070]

Стадия удаления растворителя

Стадией удаления растворителя является стадия удаления растворителя в растворе, содержащем полимер. На способ удаления растворителя особенных ограничений не накладывают, но его

примеры включают способы удаления растворителя в результате отпаривания при использовании водяного пара или непосредственного удаления растворителя.

[0071]

Количество остаточного растворителя в полимере, полученном при использовании способа получения полимера, предпочтительно составляет 2% (масс.), и менее, более предпочтительно 0,5% (масс.), и менее, еще более предпочтительно 0,2% (масс.), и менее, кроме того, еще более предпочтительно 0,05% (масс.), и менее, а в особенности предпочтительно 0,01% (масс.), и менее.

[0072]

Кроме того, с точек зрения стойкости к тепловому старению и подавления гелеобразования блок-сополимерной композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, предпочтительным является добавление антиоксиданта. На антиоксидант особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают фенольные антиоксиданты в виде акцепторов радикалов и антиоксиданты на фосфорной основе и антиоксиданты на серной основе в виде веществ, разлагающих пероксид. Кроме того, могут быть использованы антиоксиданты, демонстрирующие обе данные эксплуатационные характеристики. Они могут быть использованы индивидуально или в комбинациях из двух и более их представителей. В их числе с точек зрения стойкости к тепловому старению и подавления гелеобразования полимера предпочтительным является добавление, по меньшей мере, фенольного антиоксиданта.

[0073]

Помимо этого, с точек зрения предотвращения окрашивания полимера и его высокой механической прочности могут быть добавлены стадия обеззоливания для удаления металлов в полимере и стадия нейтрализации для регулирования значения рН полимера, например, в виде добавления кислоты или добавления газообразного диоксида углерода.

[0074]

Блок-сополимерная композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления и получаемая в соответствии с представленным выше описанием изобретения, может содержать так

называемые модифицированные полимеры, у которых с блок-сополимером связаны содержащие полярную группу функциональные группы, содержащие атомы, выбираемые из атомов азота, кислорода, кремния, фосфора, серы и олова, и модифицированные блок-сополимеры, у которых блок-сополимерный компонент модифицируют при использовании модификатора, такого как малеиновый ангидрид. Такие модифицированные сополимеры получают в результате проведения хорошо известной реакции модифицирования в отношении компонента (А), и компонента (В).

[0075]

На способ придания данных функциональных групп особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают способы присоединения функциональных групп к полимеру при использовании соединений, содержащих функциональные группы, в качестве инициатора, мономеров, агента реакции сочетания или агента реакции обрыва цепи.

[0076]

Инициатор, содержащий функциональную группу, предпочтительно является соединением, содержащим N-группу, и включает диоктиламинолитий, ди-2-этилгексиламинолитий, этилбензиламинолитий, (3-(дибутиламино)пропил) литий и пиперидинолитий.

[0077]

Кроме того, мономер, содержащий функциональную группу, включает соединения, у которых мономер, используемый в вышеупомянутой полимеризации, преобразуют для придания группы гидроксида, группы ангидрида кислоты, группы эпоксида, группы амина, группы амида, группы силанола или группы алкоксисилана. В их числе предпочтительными являются мономеры, содержащие N-группу (N-группы), и их примеры включают N,N-диметилвинилбензиламин, N,N-диэтилвинилбензиламин, N,N-дипропилвинилбензиламин, N,N-дибутилвинилбензиламин, N,N-дифенилвинилбензиламин, 2-диметиламиноэтилстирол, 2-диэтиламиноэтилстирол, 2-бис(триметилсилил)аминоэтилстирол, 1-(4-N,N-диметиламинофенил)-1-фенилэтилен, N,N-диметил-2-(4-винилбензилокси)этиламин, 4-(2-пирролидиноэтил)стирол, 4-(2-

пиперидиноэтил) стирол, 4-(2-гексаметилениминоэтил) стирол, 4-(2-морфолиноэтил) стирол, 4-(2-тиазиноэтил) стирол, 4-(2-N-метилпиперазиноэтил) стирол, 1-((4-винилфенокси)метил) пирролидин и 1-(4-винилбензилоксиметил) пирролидин.

[0078]

Кроме того, агент реакции сочетания и агент реакции обрыва цепи, содержащие функциональную группу, в числе вышеупомянутых агентов реакции сочетания включают соединения, содержащие группу гидроксида, группу ангидрида кислоты, группу эпоксида, группу амина, группу амида, группу силанола или группу алкоксисилана. В их числе предпочтительными являются агенты реакции сочетания, содержащие N-группу (группы), и O-группу (группы), и их примеры включают тетраглицидил-мета-ксилолдиамин, тетраглицидил-1,3-бисаминометилциклогексан, тетраглицидил-п-фенилендиамин, тетраглицидилдиаминодифенилметан, диглицидиланилин,  $\gamma$ -капролактон,  $\gamma$ -глицидоксиэтилтриметоксисилан,  $\gamma$ -глицидоксипропилтриметоксисилан,  $\gamma$ -глицидоксипропилтрифеноксисилан,  $\gamma$ -глицидоксипропилметилдиметоксисилан,  $\gamma$ -глицидоксипропилдиэтилэтоксисилан, 1,3-диметил-2-имидазолидинон, 1,3-диэтил-2-имидазолидинон, N,N'-диметилпропиленмочевину и N-метилпирролидон.

[0079]

Клеевая композиция

Клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, содержит 100 массовых частей вышеупомянутой блок-сополимерной композиции, от 1 до 600 массовых частей вещества, придающего клейкость, и от 0 до 200 массовых частей мягчителя. Такая клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, становится клеевой композицией, характеризующейся превосходными прочностью склеивания, клейкостью и удерживающей способностью, демонстрирующей превосходные адгезионную способность и характеристики низкой вязкости и обнаруживающей малую способность загрязнения

склеиваемых материалов.

[0080]

В данном случае тогда, когда помимо компонента (А), и компонента (В), используемых в настоящем варианте осуществления, добавляют блок-сополимер на основе стирола-бутадиена, блок-сополимер на основе стирола-изопрена, гидрированный блок-сополимер на основе стирола-бутадиена, гидрированный блок-сополимер на основе стирола-изопрена, блок-сополимер на основе стирола-бутадиена-изопрена, гидрированный блок-сополимер на основе стирола-бутадиена-изопрена и тому подобное, клеевую композицию получают содержащей от 1 до 600 массовых частей придающего клейкость вещества, описываемого ниже, и от 0 до 200 массовых частей мягчителя, описываемого ниже, при расчете на 100 массовых частей совокупного уровня содержания блок-сополимеров, отличных от настоящего варианта осуществления, и компонента (А), и компонента (В), соответствующих настоящему варианту осуществления.

[0081]

В данном случае в соответствии с областями применения предпочтительными являются выбор среднemasсовых молекулярных масс компонентов (А), и (В) в блок-сополимерной композиции и регулирование количества в смеси для каждого компонента, выбираемого из вещества, придающего клейкость, мягчителя и тому подобного.

[0082]

Вещество, придающее клейкость

Вещество, придающее клейкость, может быть выбрано в широком спектре в соответствии с областями применения и требуемыми эксплуатационными характеристиками полученной клеевой композиции. На вещество, придающее клейкость, особенных ограничений не накладывают, но в порядке примера могут быть приведены соединения на канифольной основе, такие как натуральная канифоль, модифицированная канифоль, глицериновые сложные эфиры натуральной канифоли, глицериновые сложные эфиры модифицированной канифоли, пентаэритритовые сложные эфиры натуральной канифоли, пентаэритритовые сложные эфиры

модифицированной канифоли, гидрированная канифоль и пентаэритритовые сложные эфиры гидрированной канифоли; соединения на терпеновой основе, такие как сополимеры натурального терпена, трехмерные полимеры натурального терпена, терпеновые смолы, модифицированные ароматическим соединением, гидрированные производные терпеновых смол, модифицированных ароматическим соединением, терпенфенолоформальдегидные смолы, гидрированные производные терпенфенолоформальдегидных смол, терпеновые смолы (монотерпен, дитерпен, тритерпен, политерпен и тому подобное), и гидрированные терпеновые смолы; и соединения на нефтяной углеводородной основе, такие как алифатические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C5 основе), гидрированные производные алифатических нефтяных углеводородных смол, ароматические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C9 основе), гидрированные производные ароматических нефтяных углеводородных смол, смолы на дициклопентадиеновой основе, гидрированные производные смол на дициклопентадиеновой основе, смолы на основе C5/C9 сополимера, гидрированные производные смол на основе C5/C9 сополимера, алициклические нефтяные углеводородные смолы и гидрированные производные алициклических нефтяных углеводородных смол. Данные вещества, придающие клейкость, могут быть использованы индивидуально или в комбинациях из двух и более их представителей.

[0083]

В качестве вещества, придающего клейкость, также могут быть использованы жидкие смоляные вещества, придающие клейкость, которые соответствуют диапазону цветового тона от бесцветного до светло-желтого, являются по существу свободными от запаха и характеризуются хорошей термостойкостью.

[0084]

Ниже в настоящем документе более конкретно будут описываться предпочтительные придающие клейкость вещества, удовлетворяющие областям применения и эксплуатационным характеристикам.

[0085]

Придающие клейкость вещества в виде гидрированных

производных

С точек зрения трудности окрашивания и малости запаха вещество, придающее клейкость, предпочтительно представляет собой гидрированные производные. На гидрированные производные особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают гидрированные производные терпеновых смол, модифицированных ароматическим соединением, гидрированные производные терпенфенолоформальдегидных смол, гидрированные производные алифатических нефтяных углеводородных смол (смол на C5 основе), гидрированные производные ароматических нефтяных углеводородных смол (смол на C9 основе), гидрированные производные смол на дициклопентадиеновой основе, гидрированные производные смол на основе C5/C9 сополимера и гидрированные производные алициклических нефтяных углеводородных смол. В их числе в особенности предпочтительными являются гидрированные производные ароматических нефтяных углеводородных смол (смол на C9 основе), и гидрированные производные смол на дициклопентадиеновой основе. На коммерчески доступные продукты для таких гидрированных производных особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают продукты Arkon P (торговое наименование), и Arkon M (торговое наименование), что изготавливают в компании Arakawa Chemical Industries, Ltd., Clearon (торговое наименование), что изготавливают в компании Yasuhara Chemical Co., Ltd., и ECR5400 (торговое наименование), что изготавливают в компании Exxon Mobil Corp..

[0086]

Придающие клейкость вещества, отличные от гидрированных производных

На придающие клейкость вещества, отличные от гидрированных производных, особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают натуральную канифоль, модифицированную канифоль, глицериновые сложные эфиры натуральной канифоли, глицериновые сложные эфиры модифицированной канифоли, пентаэритритовые сложные эфиры натуральной канифоли и пентаэритритовые сложные эфиры модифицированной канифоли; сополимеры натурального терпена, трехмерные полимеры

натурального терпена, терпеновые смолы, модифицированные ароматическим соединением, терпенфенолоформальдегидные смолы и терпеновые смолы; и алифатические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C5 основе), ароматические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C9 основе), смолы на дициклопентадиеновой основе, смолы на основе C5/C9 сополимера и алициклические нефтяные углеводородные смолы. В их числе предпочтительными являются алифатические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C5 основе), ароматические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C9 основе), смолы на основе C5/C9 сополимера, алициклические нефтяные углеводородные смолы, терпеновые смолы, сложные эфиры натуральной и модифицированной канифоли и их смеси. Их коммерчески доступные продукты включают продукты Wingtack Extra (торговое наименование), что изготавливают в компании Sartomer Co., Inc., Piccotac (торговое наименование), что изготавливают в компании Eastman Chemical Co., Escorez (торговое наименование), что изготавливают в компании ExxonMobil Chemicals Co., Sylvagum (торговое наименование), и Sylvalite (торговое наименование), что изготавливают в компании Arizona Chemical Co., LLC., и Piccolyte (торговое наименование), что изготавливают в компании Ashland Inc..

[0087]

Придающие клейкость вещества на алифатической основе

С точек зрения предложения клеевой композиции, характеризующейся высокой липкостью и высокой удерживающей способностью и экономической эффективностью, в качестве вещества, придающего клейкость, предпочтительно используют придающие клейкость вещества на алифатической основе. На придающие клейкость вещества на алифатической основе особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают алифатические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C5 основе), гидрированные производные алифатических нефтяных углеводородных смол (смол на C5 основе), смолы на основе C5/C9 сополимера, гидрированные производные смол на основе C5/C9 сополимера, алициклические нефтяные углеводородные смолы и гидрированные производные алициклических нефтяных

углеводородных смол. В данном случае придающее клейкость вещество на алифатической основе относится к веществу, придающему клейкость, у которого уровень содержания алифатической углеводородной группы предпочтительно составляет 50% (масс.), и более, более предпочтительно 70% (масс.), и более, еще более предпочтительно 80% (масс.), и более, кроме того, еще более предпочтительно 88% (масс.), и более, а, кроме того, еще более предпочтительно 95% (масс.), и более. В случае попадания уровня содержания алифатической углеводородной группы в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет дополнительное улучшение липкости, удерживающей способности и экономической эффективности.

[0088]

Придающее клейкость вещество на алифатической основе может быть получено в результате гомополимеризации или сополимеризации мономера, содержащего алифатическую группу и полимеризуемую ненасыщенную группу. На мономер, содержащий алифатическую группу и полимеризуемую ненасыщенную группу, особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают натуральные или синтетические терпены, содержащие C5 или C6, циклопентильную или циклогексильную группу. Кроме того, особенных ограничений не накладывают и на другие мономеры, подходящие для использования при сополимеризации, но их примеры включают 1,3-бутадиен, цис-1,3-пентадиен, транс-1,3-пентадиен, 2-метил-1,3-бутадиен, 2-метил-2-бутен, циклопентадиен, дициклопентадиен, терпен и терпенфенолоформальдегидные смолы.

[0089]

Ароматические вещества, придающие клейкость

С точки зрения предложения клеевой композиции, характеризующейся высокой адгезионной прочностью и высокой пригодностью для нанесения покрытия, в качестве вещества, придающего клейкость, предпочтительно используют ароматические вещества, придающие клейкость. На ароматические вещества, придающие клейкость, особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают ароматические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C9 основе), и смолы на основе C5/C9 сополимера. В

данном случае ароматическое вещество, придающее клейкость, относится к веществу, придающему клейкость, у которого уровень содержания ароматической углеводородной группы предпочтительно составляет 50% (масс.), и более, более предпочтительно 70% (масс.), и более, еще более предпочтительно 80% (масс.), и более, кроме того, еще более предпочтительно 88% (масс.), и более, а, кроме того, еще более предпочтительно 95% (масс.), и более. В случае попадания уровня содержания ароматической углеводородной группы в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет дополнительное улучшение прочности склеивания и пригодности для нанесения покрытия.

[0090]

Ароматическое вещество, придающее клейкость, может быть получено в результате гомополимеризации или сополимеризации мономера, содержащего ароматическую группу и полимеризуемую ненасыщенную группу. На мономер, содержащий ароматическую группу и полимеризуемую ненасыщенную группу, особых ограничений не накладывают, но его примеры включают стирол,  $\alpha$ -метилстирол, винилтолуол, метоксистирол, трет-бутилстирол, хлорстирол и инденовый мономер (в том числе метилинден). Кроме того, особых ограничений не накладывают и на другие мономеры, подходящие для использования при сополимеризации, но их примеры включают 1,3-бутадиен, цис-1,3-пентадиен, транс-1,3-пентадиен, 2-метил-1,3-бутадиен, 2-метил-2-бутен, циклопентадиен, дициклопентадиен, терпен и терпенфенолоформальдегидные смолы.

[0091]

Придающие клейкость вещества, обладающие сродством к блокам стеклообразной фазы (например, полимерному блоку (Ar)) и/или нестеклообразной фазы (например, полимерному блоку (D)) блок-сополимера

С точек зрения высокой адгезии, изменчивости с течением времени адгезионной прочности или эксплуатационных характеристик ползучести (их наименьшие значения являются лучшими), низкой вязкости расплава, теплостойкости и тому

подобного и хорошего баланса между ними для клеевой композиции более предпочтительным является содержание клеевой композицией от 20 до 75% (масс.) придающего клейкость вещества, обладающего сродством к блокам нестеклообразной фазы (обычно средним блокам) блок-сополимера, и от 0,1 до 30% (масс.) придающего клейкость вещества, обладающего сродством к блокам (обычно внешним блокам) стеклообразной фазы блок-сополимера. В данном случае блок-сополимер представляет собой концепцию, включающую компоненты (А), и (В).

[0092]

Уровень содержания придающего клейкость вещества, обладающего сродством к нестеклообразной фазе блок-сополимера, предпочтительно находится в диапазоне от 20 до 75% (масс.), более предпочтительно от 25 до 70% (масс.), а еще более предпочтительно от 30 до 65% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции.

[0093]

На придающее клейкость вещество, обладающее сродством к блокам (например, полимерному блоку (Ar)) стеклообразной фазы блок-сополимера, особенных ограничений не накладывают, но предпочтительно оно представляет собой, например, смолы, содержащие ароматическое кольцо в своей молекуле. На такие смолы особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают смолы, содержащие ароматическую группу, такие как гомополимеры или сополимеры, включающие винилтолуол, стирол,  $\alpha$ -метилстирол, кумарон или инден в качестве звена, составляющего структуру. В их числе предпочтительными являются продукты Kristalex, Plastolyn и Piccotex (что изготавливают в компании Eastman Chemical Co., торговые наименования), включающие  $\alpha$ -метилстирол.

[0094]

Уровень содержания придающего клейкость вещества, обладающего сродством к блокам стеклообразной фазы блок-сополимера, предпочтительно находится в диапазоне от 0,5 до 30% (масс.), более предпочтительно от 1 до 20% (масс.), а еще более

предпочтительно от 2 до 12% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции.

[0095]

С точки зрения высокой первоначальной адгезионной прочности, высокой смачиваемости, низкой вязкости расплава клеевой композиции, высокой пригодности для нанесения покрытия и тому подобного в качестве вещества, придающего клейкость, предпочитается использовать нефтяную смолу, характеризующуюся уровнем содержания ароматических звеньев в диапазоне от 3 до 12% (масс.). На такую нефтяную смолу особенных ограничений не накладывают, но ее примеры включают алифатические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C5 основе), гидрированные производные алифатических нефтяных углеводородных смол (смол на C5 основе), ароматические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C9 основе), гидрированные производные ароматических нефтяных углеводородных смол (смол на C9 основе), смолы на дициклопентадиеновой основе, гидрированные производные смол на дициклопентадиеновой основе, смолы на основе C5/C9 сополимера, гидрированные производные смол на основе C5/C9 сополимера, алициклические нефтяные углеводородные смолы и гидрированные производные алициклических нефтяных углеводородных смол. Уровень содержания ароматических звеньев в нефтяной смоле предпочтительно находится в диапазоне от 3 до 12% (масс.), а более предпочтительно от 4 до 10% (масс.). В числе нефтяных смол в особенности предпочтительными являются гидрированные нефтяные смолы.

[0096]

С точки зрения высокой начальной адгезионной прочности, высокой смачиваемости, низкой вязкости расплава клеевой композиции, высокой пригодности для нанесения покрытия и тому подобного в качестве вещества, придающего клейкость, предпочитается использовать стирольный олигомер. На стирольный олигомер особенных ограничений не накладывают, но он включает ароматические нефтяные углеводородные смолы (смолы на C9 основе), такие как продукты Piccolastic A5 и Piccolastic A75 (что изготавливают в компании Eastman Chemical Co., торговые

наименования).

[0097]

Уровень содержания стирольного олигомера предпочтительно составляет 35% (масс.), и менее, более предпочтительно 30% (масс.), и менее, а еще более предпочтительно 25% (масс.), и менее, при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции.

[0098]

С точек зрения высокой способности препятствования созданию сильного запаха, высокой атмосферостойкости, высокой прозрачности, бесцветности, низкого термического обесцвечивания и тому подобного в качестве вещества, придающего клейкость, предпочитается использовать гидрированные смолы (например, вышеупомянутые гидрированные производные).

[0099]

Уровень содержания вещества, придающего клейкость, составляет 1 массовую часть и более, предпочтительно 30 массовых частей и более, более предпочтительно 50 массовых частей и более, а еще более предпочтительно 75 массовых частей и более, при расчете на 100 массовых частей блок-сополимерной композиции. Кроме того, уровень содержания вещества, придающего клейкость, составляет 600 массовых частей и менее, предпочтительно 500 массовых частей и менее, а более предпочтительно 400 массовых частей и менее, при расчете на 100 массовых частей блок-сополимерной композиции. Кроме того, уровень содержания вещества, придающего клейкость, находится в диапазоне от 1 до 600 массовых частей, предпочтительно от 10 до 600 массовых частей, более предпочтительно от 30 до 500 массовых частей, а еще более предпочтительно от 50 до 400 массовых частей, при расчете на 100 массовых частей блок-сополимерной композиции. В случае попадания уровня содержания вещества, придающего клейкость, в пределы вышеупомянутого диапазона будет дополнительно улучшена адгезионная способность.

[0100]

В случае содержания клеевой композицией, соответствующей настоящему варианту осуществления, описываемых ниже полимеров, отличных от компонента (А), и компонента (В), уровень

содержания вещества, придающего клейкость, будет находиться в диапазоне от 1 до 600 массовых частей, предпочтительно от 10 до 600 массовых частей, более предпочтительно от 30 до 500 массовых частей, а еще более предпочтительно от 50 до 400 массовых частей, при расчете на 100 массовых частей совокупности из полимеров, отличных от компонента (А), и компонента (В), и блок-сополимерной композиции. В случае попадания уровня содержания вещества, придающего клейкость, в пределы вышеупомянутого диапазона будет дополнительно улучшена адгезионная способность.

[0101]

Мягчитель

Термин «мягчитель» относится к соединению, обладающему функциями уменьшения твердости клеевой композиции и уменьшения ее вязкости. На мягчитель особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают хорошо известные масла, такие как парафиновые технологические масла, нефтеновые технологические масла, технологические масла на основе ароматических соединений и их смешанные масла; пластификаторы; синтетические жидкие олигомеры; и их смеси.

[0102]

Ниже в настоящем документе более конкретно будут описываться предпочтительные мягчители, удовлетворяющие областям применения и эксплуатационным характеристикам.

[0103]

С точек зрения уменьшения вязкости, улучшения липкости и низкой твердости клеевой композиции могут быть использованы масла. На масла особенных ограничений не накладывают, но они включают хорошо известные парафиновые технологические масла, нефтеновые технологические масла, технологические масла на основе ароматических соединений и их смешанные масла.

[0104]

В случае использования клеевой композиции в качестве препаратов для трансдермального впитывания с точек зрения улучшения трансдермальной впитываемости и стабильности при консервации и усовершенствования растворимости лекарственного

препарата в клеевой композиции в качестве мягчителя могут быть использованы пластификаторы. На пластификаторы особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают жидкий парафин; сложные эфиры жирных кислот, образованные из высших жирных кислот, содержащих от 12 до 16 атомов углерода, такие как изопропилмиристинат, этиллауринат и изопропилпальмитат, и низших одноатомных спиртов, содержащих от 1 до 4 атомов углерода; жирные кислоты, содержащие от 8 до 10 атомов углерода; гликоли, такие как этиленгликоль, диэтиленгликоль, триэтиленгликоль, полиэтиленгликоль, пропиленгликоль и полипропиленгликоль; масла и жиры, такие как оливковое масло, касторовое масло, сквален и ланолин; органические растворители, такие как этилацетат, этиловый спирт, диметилдецилсульфоксид, децилметилсульфоксид, диметилсульфоксид, диметилформамид, диметилацетамид, диметиллауриламид, додецилпирролидон, изосорбит, олеиловый спирт и лауриновая кислота; жидкие поверхностно-активные вещества; и этоксилированный стеариловый спирт, глицериновые сложные эфиры, изотридецилмиристинат, N-метилпирролидон, этилолеинат, олеиновую кислоту, диизопропиладипинат, октилпальмитат, 1,3-пропандиол и глицерин. В их числе используют соединения, жидкие при обычной температуре. В их числе предпочтительными являются глицериновые сложные эфиры; а более предпочтительными являются триглицериды среднецепочечных жирных кислот, которые представляют собой сложные эфиры, полученные из жирных кислот, содержащих от 8 до 10 атомов углерода, и глицерина. Примеры триглицеридов среднецепочечных жирных кислот включают три (каприловой кислоты/каприновой кислоты) глицерил. Пластификатор может быть использован индивидуально или в комбинациях из двух и более его представителей.

[0105]

В случае использования клеевой композиции и лент с клеем, склеивающим при надавливании, в качестве медицинских лент с клеем, склеивающим при надавливании, таких как ленты для тейпинга, предпочтительно будут использовать комбинации из жидкого парафина с другими пластификаторами.

[0106]

В случае использования клеевой композиции и лент с клеем, склеивающим при надавливании, в медицинских областях применения добавляемое количество пластификатора предпочтительно будет находиться в диапазоне от 3 до 30% (масс.), более предпочтительно от 3 до 20% (масс.), а еще более предпочтительно от 3 до 10% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. В случае добавляемого количества жидкого пластификатора, составляющего 3% (масс.), и более, вероятным будет дополнительное улучшение трансдермальной впитываемости, стабильности при консервации и растворимости лекарственного препарата в клеевой композиции. Кроме того, в случае добавляемого количества жидкого пластификатора, составляющего 20% (масс.), и менее, вероятным будет дополнительное улучшение когезионной силы клеевой композиции.

[0107]

В случае наличия намерения размягчить клеевую композицию с точки зрения улучшения характеристик выпотевания могут быть использованы синтетические жидкие олигомеры. На синтетические жидкие олигомеры особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают стирольные олигомеры, бутадиеновые олигомеры, изопреновые олигомеры и бутеновые олигомеры.

[0108]

На коммерчески доступные продукты для таких мягчителей особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают продукты Diana Fresia S32 (торговое наименование), Diana Process Oil PW-90 (торговое наименование), и Diana Process Oil NS-90S (торговое наименование), что изготавливают в компании Idemitsu Kosan Co., Ltd., White Oil Broom 350 (торговое наименование), и DN Oil KP-68 (торговое наименование), что изготавливают в компании Kukdong Oil&Chem Co., Ltd., Enerper M1930 (торговое наименование), что изготавливают в компании BP Chemicals Ltd., Kaydol (торговое наименование), что изготавливают в компании Crompton Corp., Primol 352 (торговое наименование), что изготавливают в компании Esso Standard Petroleum Co., Ltd., и KN4010 (торговое наименование), что

изготавливают в компании PetroChina Co..

[0109]

Кроме того, уровень содержания мягчителя находится в диапазоне от 0 до 200 массовых частей, предпочтительно от 10 до 175 массовых частей, а более предпочтительно от 20 до 150 массовых частей, при расчете на 100 массовых частей блок-сополимерной композиции. В случае попадания уровня содержания мягчителя в пределы вышеупомянутого диапазона будет дополнительно улучшена адгезионная способность.

[0110]

Кроме того, уровень содержания мягчителя предпочтительно составляет 35% (масс.), и менее, а более предпочтительно 3% (масс.), и более, и 30% (масс.), и менее, при расчете на клеевую композицию. В случае попадания уровня содержания мягчителя в пределы вышеупомянутого диапазона будет дополнительно улучшена адгезионная способность.

[0111]

В случае содержания клеевой композицией, соответствующей настоящему варианту осуществления, описываемых ниже полимеров, отличных от компонента (А), и компонента (В), уровень содержания мягчителя будет находиться в диапазоне от 0 до 200 массовых частей, предпочтительно от 10 до 175 массовых частей, а более предпочтительно от 20 до 150 массовых частей, при расчете на 100 массовых частей совокупности из полимеров, отличных от компонента (А), и компонента (В), и блок-сополимерной композиции. В случае попадания уровня содержания мягчителя в пределы вышеупомянутого диапазона будет дополнительно улучшена адгезионная способность.

[0112]

Другие компоненты

Клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, по мере надобности может содержать полимеры, отличные от компонента (А), и компонента (В), воска, полимеры, содержащие полярную группу, стабилизаторы и микрочастицы наполнителей.

[0113]

Полимеры, отличные от компонента (А), и компонента (В)

На полимеры, отличные от компонента (А), и компонента (В), особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают полиолефиновые сополимеры, винилароматические эластомеры и другие каучуки. В данном случае в настоящем описании изобретения термин «отличный от компонента (А), и компонента (В)» обозначает отсутствие соответствия как компоненту (А), так и компоненту (В).

[0114]

На полиолефиновые сополимеры особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают атактический полипропилен и сополимеры этилена-этилакрилата.

[0115]

На винилароматические эластомеры особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают блок-сополимеры на основе стирола-этилена, блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена, блок-сополимеры на основе стирола-пропилена, блок-сополимеры на основе стирола-изопрена, блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена-изопрена, гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена, гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-изопрена и гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена-изопрена, которые представляют собой полимеры, отличные от компонента (А), и компонента (В).

[0116]

Кроме того, уровень содержания винилароматических эластомеров, отличных от компонента (А), и компонента (В), предпочтительно находится в диапазоне от 5 до 95 массовых частей, более предпочтительно от 10 до 90 массовых частей, а еще более предпочтительно от 15 до 85 массовых частей, при расчете на 100 массовых частей совокупности из компонента (А), и компонента (В), и блок-сополимеров, отличных от компонента (А), и компонента (В).

[0117]

На другие каучуки особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают натуральный каучук; и синтетические каучуки, такие как изопрен-изобутиленовый каучук,

полиизопреновый каучук, полибутадиеновый каучук, стирол-бутадиеновый каучук, стирол-изопреновый каучук, пропилен-бутиленовый каучук, этилен-пропиленовый каучук, хлоропреновый каучук, акриловый каучук и полипентамерный каучук. В их числе с точек зрения сшиваемости и экономической эффективности предпочтительным является натуральный каучук.

[0118]

При использовании натурального каучука вероятными являются дополнительное улучшение сшиваемости клеевой композиции и получение клеевой композиции, характеризующейся также и превосходной экономической эффективностью.

[0119]

Уровень содержания натурального каучука предпочтительно находится в диапазоне от 3 до 90% (масс.), более предпочтительно от 10 до 80% (масс.), а еще более предпочтительно от 15 до 75% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. В случае попадания уровня содержания натурального каучука в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет дополнительное улучшение сшиваемости, теплостойкости, стойкости к воздействию растворителей и экономической эффективности клеевой композиции.

[0120]

Ниже в настоящем документе более конкретно будут описываться предпочтительные полимеры, отличные от компонента (А), и компонента (В), и соответствующие областям применения и эксплуатационным характеристикам.

[0121]

Гидрированный винилароматический эластомер

С точек зрения уменьшения количества остатков клея при нанесении на склеиваемый материал и отслаивании вязкого клея, подавления изменчивости с течением времени адгезионной прочности или характеристик ползучести (их меньшие значения являются лучшими), теплостойкости, атмосферостойкости и тому подобного может быть использован гидрированный винилароматический эластомер. На гидрированный винилароматический эластомер особенных ограничений не

накладывают, но его примеры включают гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена, обладающие структурой S-EB-S (S: полистирольный блок, EB: блок сополимера этилена/бутилена), и тому подобное; гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-изопрена, обладающие структурой S-EP-S (S: полистирольный блок, EP: блок сополимера этилена/пропилена), и тому подобное; и гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена-изопрена, обладающие структурой S-EEP-S (S: полистирольный блок, EEP: блок сополимера этилена/этилена/пропилена), и тому подобное. В их числе предпочтительными являются гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена и гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-изопрена.

[0122]

Уровень содержания стирола в гидрированном винилароматическом эластомере предпочтительно находится в диапазоне от 10% (масс.) до 45% (масс.), более предпочтительно от 13% (масс.) до 40% (масс.), а еще более предпочтительно от 15% (масс.) до 35% (масс.), при расчете на 100% (масс.) гидрированного винилароматического эластомера.

[0123]

Кроме того, уровень содержания полистирольного блока в гидрированном винилароматическом эластомере предпочтительно составляет 30% (масс.), и менее, более предпочтительно 21% (масс.), и менее, а еще более предпочтительно 15% (масс.), и менее, при расчете на 100% (масс.) гидрированного винилароматического эластомера. В случае попадания уровня содержания полистирольного блока в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет дополнительное улучшение гибкости и совместимости.

[0124]

Кроме того, лучшим является более высокий уровень содержания звена В в блоке сополимера этилена/бутилена в гидрированном винилароматическом эластомере; и уровень содержания звена В предпочтительно составляет 35% (моль.), и более, более предпочтительно 45% (моль.), и более, еще более

предпочтительно 55% (моль.), и более, а в особенности предпочтительно 60% (моль.), и более, при расчете на 100% (масс.) гидрированного винилароматического эластомера. В случае попадания уровня содержания звена В в блоке сополимера этилена/бутилена в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет дополнительное улучшение гибкости и совместимости.

[0125]

Степень гидрирования ненасыщенных групп в звене сопряженного диенового мономера в гидрированном винилароматическом эластомере предпочтительно является большей, чем 80% (моль.).

[0126]

Негидрированный винилароматический эластомер

С точки зрения высокой гибкости, высокой адгезии, подавления гелеобразования, высокой экономической эффективности и тому подобного для клеевой композиции может быть использован негидрированный винилароматический эластомер. На негидрированный винилароматический эластомер особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают блок-сополимеры на основе стирола-этилена; блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена, обладающие структурой S-B-S,  $(S-B)_nX$  (S: полистирольный блок, B: полибутадиеновый блок, X: остаток агента реакции сочетания), и тому подобное; блок-сополимеры на основе стирола-пропилена; блок-сополимеры на основе стирола-изопрена, обладающие структурой S-I-S,  $(S-I)_nX$  (S: полистирольный блок, I: полиизопреновый блок, X: остаток агента реакции сочетания), и тому подобное; и блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена-изопрена, обладающие структурой  $(S-(I/B))_nX$ , S-(I/B)-S (S: полистирольный блок, I/B: блок сополимера изопрена/бутадиена (изопрен и бутадиен могут быть скомпонованы с чередованием при любом соотношении, и соотношение может не быть постоянным), X: остаток агента реакции сочетания), и тому подобное. В их числе предпочтительными являются сополимеры  $(S-I)_nX$ ,  $(S-B)_nX$  и  $(S-(I/B))_nX$ , а более предпочтительными являются сополимеры, обладающие радиальной структурой. Они могут быть использованы

индивидуально или в комбинациях из двух и более их представителей.

[0127]

Уровень содержания стирола в негидрированном винилароматическом эластомере предпочтительно составляет 45% (масс.), и менее при расчете на 100% (масс.) негидрированного винилароматического эластомера.

[0128]

Кроме того, уровень содержания двухблочников (например, S-B, S-I, S-B-X, S-I-X) в негидрированном винилароматическом эластомере предпочтительно находится в диапазоне от 10 до 80% (масс.) при расчете на 100% (масс.) негидрированного винилароматического эластомера.

[0129]

Блок-сополимер на изопреновой основе

С точек зрения экономической эффективности и клейкости для клеевой композиции может быть использован блок-сополимер на изопреновой основе, содержащий звено негидрированного изопренового мономера. На блок-сополимер на изопреновой основе особенных ограничений не накладывают, но предпочтительными являются, например, блок-сополимеры на основе стирола-изопрена, обладающие структурой  $(S-I)_n$ ,  $(S-I)_n-S$ ,  $(S-I)_nX$  (S: полистирольный блок, I: полиизопреновый блок, n: целое число, составляющее 1 и более, предпочтительно целое число в диапазоне от 1 до 6, X: представляет собой остаток агента реакции сочетания), и тому подобное. Они могут быть использованы индивидуально или в комбинации из двух и более их представителей.

[0130]

Уровень содержания стирола в блок-сополимере на изопреновой основе предпочтительно составляет 30% (масс.), и менее, более предпочтительно 25% (масс.), и менее, еще более предпочтительно 20% (масс.), и менее, а, кроме того, еще более предпочтительно 18% (масс.), и менее, при расчете на 100% (масс.) блок-сополимера на изопреновой основе.

[0131]

Каучук на основе сопряженного диена

С точек зрения перерабатываемости, низкой вязкости расплава при 180°C и менее и хороших клейкости, прочности склеивания, адгезии и характеристик резания штампованием может быть использован каучук на основе сопряженного диена. На каучук на основе сопряженного диена особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают изопрен-изобутиленовый каучук, полиизопреновый каучук, полибутадиеновый каучук, стирол-бутадиеновый каучук, стирол-изопреновый каучук и пропилен-бутиленовый каучук.

[0132]

Кроме того, с точки зрения улучшения прочности склеивания с собственной задней поверхностью и прочности присоединения кожного пластыря для композиции для лент с клеем, склеивающим при надавливании, могут быть использованы полибутадиеновый каучук или полиизопреновый каучук. В их числе более предпочтительным является полиизопреновый каучук. Добавляемое количество полибутадиенового каучука и полиизопренового каучука предпочтительно находится в диапазоне от 3 до 25% (масс.), более предпочтительно от 5 до 20% (масс.), а еще более предпочтительно от 5 до 15% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. В случае добавляемого количества полибутадиенового каучука и полиизопренового каучука, составляющего 3% (масс.), и более, вероятным будет дополнительное улучшение прочности склеивания с собственной задней поверхностью и прочности присоединения кожного пластыря. Кроме того, в случае добавляемого количества полибутадиенового каучука и полиизопренового каучука, составляющего 25% (масс.), и менее, вероятными будут дополнительное улучшение когезионной силы и большее подавление формирования остатков клея.

[0133]

С точек зрения перерабатываемости, низкой вязкости расплава при 180°C и менее и хороших клейкости, прочности склеивания и адгезии в качестве каучука на основе сопряженного диена может быть использован двухблочный сополимер на основе

сопряженного диена. На двухблочный сополимер на основе сопряженного диена особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают полимеры, обладающие структурой S-I, (S-I)X, S-B, (S-B)X, и тому подобное и их гидрированные соединения. Они могут быть использованы индивидуально или в комбинациях из двух и более их представителей и могут быть жидкими или твердыми при обычной температуре.

[0134]

Уровень содержания каучука на основе сопряженного диена предпочтительно находится в диапазоне от 3 до 90% (масс.), более предпочтительно от 10 до 80% (масс.), а еще более предпочтительно от 15 до 75% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. В случае попадания уровня содержания каучука на основе сопряженного диена в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет дополнительное улучшение стойкости к выпотеванию масла, низкой вязкости расплава, клейкости, прочности склеивания, адгезии и гибкости клеевой композиции.

[0135]

#### Иономер

В случае наличия потребности для клеевой композиции в высокой пригодности для низкотемпературного нанесения покрытия, характеристиках ползучести, высокой прочности или высоком относительном удлинении и тому подобном полимер может быть использован в состоянии, соответствующем иономеру. На иономер особенных ограничений не накладывают, но предпочтительными являются, например, гомополимеры или сополимеры, включающие карбоксилаты, сульфонаты или фосфонаты, нейтрализованные или частично нейтрализованные при использовании ионов металлов. Уровень содержания иономера предпочтительно составляет 5% (масс.), и менее при расчете на совокупное количество клеевой композиции.

[0136]

#### Полиолефиновая смола

С точки зрения стабильности при высокотемпературном хранении, высокого относительного удлинения, уменьшения

количества (55% (масс.), и менее, кроме того, 45% (масс.), и менее в композиции) вещества, придающего клейкость, в клеевой композиции и тому подобного может быть использована полиолефиновая смола. На полиолефиновую смолу особенных ограничений не накладывают, но предпочтительно используют, например, сополимер  $\alpha$ -олефина с олефином или гомополимер пропилена. Температура плавления (условия: измерение по методу ДСК, 5°C/мин) данных полимеров предпочтительно составляет 110°C и менее, более предпочтительно 100°C и менее, а еще более предпочтительно находится в диапазоне от 60°C до 90°C. Данные полимеры могут представлять собой смолы или эластомеры.

[0137]

Кроме того, с точки зрения эксплуатационных характеристик ползучести (их меньшее значение является лучшим) более предпочтительным является олефиновый эластомер, содержащий блоки. Молекулярно-массовое распределение для данных полимеров предпочтительно находится в диапазоне от 1 до 4, а более предпочтительно от 1 до 3. Кроме того, с точки зрения перерабатываемости более предпочтительным является объединенное использование двух и более полимеров. Говоря конкретно, предпочтительным является объединенное использование полимеров при диапазонах от 30000 до 60000 и от 60000 до 90000; а более предпочтительным является объединенное использование, по меньшей мере, полимеров при диапазонах от 35000 до 55000 и от 60000 до 80000.

[0138]

Жидкий компонент

В клеевой композиции, использующей полиолефиновую смолу, предпочтительно содержится жидкий компонент (масло и тому подобное). Уровень содержания жидкого компонента предпочтительно составляет 20% (масс.), и более, а более предпочтительно 25% (масс.), и более, при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. Кроме того, в случае наличия потребности в относительном удлинении предпочтительным является объединенное использование олефинового эластомера; а более

предпочтительным является объединенное использование олефинового эластомера, характеризующегося значением  $T_g$ , составляющим  $-10^{\circ}\text{C}$  и менее.

[0139]

Воск

В клеевой композиции по мере надобности может содержаться воск. Добавляемое количество воска предпочтительно составляет 20% (масс.), и менее, более предпочтительно находится в диапазоне от 2 до 10% (масс.), а еще более предпочтительно от 5 до 10% (масс.), при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. В случае попадания добавляемого количества воска в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет большее уменьшение вязкости расплава, в частности, вязкости расплава при  $140^{\circ}\text{C}$  и менее.

[0140]

На воск особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают парафиновый воск, микрокристаллический воск и воск Фишера-Тропша. При использовании такого воска вероятным является большее уменьшение вязкости расплава, в частности, вязкости расплава при  $140^{\circ}\text{C}$  и менее.

[0141]

Температура плавления воска предпочтительно составляет  $50^{\circ}\text{C}$  и более, более предпочтительно  $65^{\circ}\text{C}$  и более, еще более предпочтительно  $70^{\circ}\text{C}$  и более, а, кроме того, еще более предпочтительно  $75^{\circ}\text{C}$  и более. Кроме того, температура плавления воска предпочтительно составляет  $110^{\circ}\text{C}$  и менее. В случае попадания температуры плавления воска в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет большее уменьшение вязкости расплава, в частности, вязкости расплава при  $140^{\circ}\text{C}$  и менее.

[0142]

В данном случае температура размягчения придающего клейкость вещества, используемого одновременно с воском, предпочтительно составляет  $70^{\circ}\text{C}$  и более, а более предпочтительно  $80^{\circ}\text{C}$  и более. Значение  $G'$  (условия измерения:

25°C, 10 рад/сек) для клеевой композиции, получаемой в данном случае, предпочтительно составляет 1 МПа и менее; а ее температура кристаллизации предпочтительно составляет 7°C и менее.

[0143]

Полимер, содержащий полярную группу

Клеевая композиция по мере надобности может содержать содержащий полярную группу полимер, содержащий атом (атомы), выбираемый из группы, состоящей из азота, кислорода, кремния, фосфора, серы, олова и тому подобного. На полимер, содержащий полярную группу, особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают так называемые модифицированные полимеры, у которых данные функциональные группы, содержащие полярную группу, связаны с блок-сополимерами, модифицированными блок-сополимерами, полученными в результате модифицирования блок-сополимерных компонентов при использовании модификатора, такого как малеиновый ангидрид, и маслами, модифицированными по боковым цепям и концевым группам при использовании амина, эпоксида, карбоновой кислоты, ангидрида карбоновой кислоты и тому подобного. При использовании полимера, содержащего полярную группу, вероятным является дополнительное улучшение адгезионной способности по отношению к склеиваемым материалам, характеризующимся высоким значением параметра растворимости, таким как смолы, в том числе сверхвпитывающие полимеры (SAP), акриловые смолы, винилхлоридные смолы и нейлоновые смолы, их шитые соединения, стекла и металлы.

[0144]

Стабилизатор

Клеевая композиция по мере надобности может содержать стабилизатор. Термин «стабилизатор» относится к веществу, примешиваемому в целях предотвращения для термопластичных клеев уменьшения молекулярной массы, гелеобразования и окрашивания, появления запаха и тому подобного вследствие воздействия тепла и для улучшения стабильности термопластичных клеев, и на стабилизатор особенных ограничений не накладывают. В качестве

стабилизатора в порядке примера могут быть приведены антиоксиданты, светостабилизаторы и тому подобное. Антиоксиданты и светостабилизаторы обычно используются в продукции одноразового использования и могут быть использованы до тех пор, пока они будут способны обеспечивать получение продукции одноразового использования в качестве целевых объектов, описываемых ниже, и на них особенных ограничений не накладывают.

[0145]

#### Антиоксидант

«Антиоксидант» используют в целях предотвращения окислительного ухудшения качества термопластичных клеев. На антиоксидант особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают антиоксиданты на фенольной основе, такие как 2,6-ди-трет-бутил-4-метилфенол, н-октадецил-3-(4'-гидрокси-3',5'-ди-трет-бутилфенил) пропионат, 2,2'-метиленбис(4-метил-6-трет-бутилфенол), 2,2'-метиленбис(4-этил-6-трет-бутилфенол), 2,4-бис[(октилтио)метил]-о-крезол, 2-трет-бутил-6-(3-трет-бутил-2-гидрокси-5-метилбензил)-4-метилфенилакрилат, 2,4-ди-трет-амил-6-[1-(3,5-ди-трет-амил-2-гидроксифенил)этил]фенилакрилат и 2-[1-(2-гидрокси-3,5-ди-трет-пентилфенил)]акрилат; антиоксиданты на серной основе, такие как дилаурилтиодипропионат, лаурилстеарилтиодипропионат, пентаэритриттетраakis(β-лаурилтио)пропионат; и антиоксиданты на фосфорной основе, такие как трис(нонилфенил)фосфит и трис(2,4-ди-трет-бутилфенил)фосфит. Они могут быть использованы индивидуально или в комбинациях из двух и более их представителей.

[0146]

В качестве конкретных примеров коммерчески доступных продуктов для антиоксиданта в порядке примера могут быть приведены продукты Sumiriser GM (торговое наименование), Sumiriser TPD (торговое наименование), и Sumiriser TPS (торговое наименование), что изготавливают в компании Sumitomo Chemical Co., Ltd., Irganox 1076 (торговое наименование), Irganox 1010 (торговое наименование), Irganox HP2225FF

(торговое наименование), Irgafos 168 (торговое наименование), и Irganox 1520 (торговое наименование), что изготавливают в компании Ciba Specialty Chemicals Corp., и JF77 (торговое наименование), что изготавливают в компании Johoku Chemical Co., Ltd..

[0147]

Уровень содержания антиоксиданта предпочтительно составляет 10 массовых частей и менее, а более предпочтительно 5 массовых частей и менее, при расчете на 100 массовых частей клеевой композиции.

[0148]

Светостабилизатор

«Светостабилизатор» используют в целях улучшения светостойкости термоплавких клеев. На светостабилизатор особых ограничений не накладывают, но его примеры включают поглотители ультрафиолетового излучения на бензотриазольной основе, такие как 2-(2'-гидрокси-5'-метилфенил) бензотриазол, 2-(2'-гидрокси-3',5'-трет-бутилфенил) бензотриазол и 2-(2'-гидрокси-3',5'-ди-трет-бутилфенил)-5-хлорбензотриазол; поглотители ультрафиолетового излучения на бензофеноновой основе, такие как 2-гидрокси-4-метоксибензофенон; поглотители ультрафиолетового излучения на триазиновой основе; светостабилизаторы на основе пространственно затрудненного амина; и стабилизаторы на лактоновой основе: соединения HALS. Они могут быть использованы индивидуально или в комбинациях из двух и более их представителей.

[0149]

В качестве конкретных примеров коммерчески доступных продуктов для светостабилизатора в порядке примера могут быть приведены продукты Tinuvin P (торговое наименование), Tinuvin 770DF (торговое наименование), и Cimassorb 2020FDL (торговое наименование), что изготавливают в компании BASF, и ADK STAB LA-52 (торговое наименование), ADK STAB LA-57 (торговое наименование), и ADK STAB LA-77Y (торговое наименование), что изготавливают в компании Adeka Corp..

[0150]

Уровень содержания светостабилизатора предпочтительно составляет 10 массовых частей и менее, а более предпочтительно 5 массовых частей и менее, при расчете на 100 массовых частей клеевой композиции.

[0151]

(Микрочастицы наполнителей)

На микрочастицы наполнителя особенных ограничений не накладывают, но их примеры включают слюду, карбонат кальция, каолин, тальк, диоксид титана, диатомитовую землю, смолы на мочевиновой основе, полистирольные гранулы, кальцинированную глину и крахмал. Их профили являются сферическими, и на их размеры (диаметр в случае сферического профиля) особенных ограничений не накладывают.

[0152]

Свойства клеевой композиции

Эксплуатационные характеристики клеевой композиции, соответствующей настоящему варианту осуществления, могут быть измерены при использовании лент с клеем, склеивающим при надавливании, изготовленных в условиях, указанных в примерах, описываемых ниже, и в условиях измерения, указанных в примерах.

[0153]

Значение  $G'$  (условия измерения: 25°C, 10 рад/сек) для клеевой композиции предпочтительно составляет 20000 и менее, а более предпочтительно 15000 и менее. В случае попадания значения  $G'$  для вязкого клея в пределы вышеупомянутого диапазона вероятным будет большее уменьшение количества остатков клея клеевой композиции.

[0154]

Кроме того, уровень содержания жидкого разбавителя предпочтительно составляет 60% (масс.), и менее при расчете на 100% (масс.) клеевой композиции. В случае попадания уровня содержания жидкого разбавителя в пределы вышеупомянутого диапазона клеевая композиция будет подходящей для использования, в частности, при нанесении клеев на кожу, в том

числе при нанесениях для трансдермальной доставки лекарственного препарата.

[0155]

Клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, может быть также использована при переработке бумаги, в переплетном деле, для продукции одноразового использования и так далее. В их числе клеевая композиция вследствие ее превосходной адгезии во влажном состоянии является подходящей для использования в продукции одноразового использования. Продукция одноразового использования может быть образована в результате нанесения из раствора или нанесения из расплава покрытия из клеевой композиции на, по меньшей мере, одном типе элементов, выбираемых из группы, состоящей из тканых материалов, нетканых материалов, каучуков, смол, бумаг, полиолефиновых пленок, пленок сложного полиэфира, пленок полимера PVC, иономерных пленок, пленок полимера PVDC, пленок полимера PVA, пленок полимера PC, пленок полимера PS, пленок полимера PAN, пленок полимера PEN, целлофановых пленок, нейлоновых пленок, полиимидных пленок, пленок полимера EМАА и пленок полимера EVOH. В данном случае в отношении полиолефиновых пленок по причинам долговечности, стоимости и тому подобного предпочтительными являются полиэтиленовые пленки и полипропиленовые пленки.

[0156]

Вязкость расплава при 150°C у термоплавкого вязкого клея для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, предпочтительно составляет 5000 мПа·сек и менее, более предпочтительно находится в диапазоне от 400 до 3500 мПа·сек и менее, а еще более предпочтительно в диапазоне от 800 до 3000 мПа·сек. Вязкостью расплава является вязкость расплавленного материала термоплавкого вязкого клея, и ее измеряют при использовании вискозиметра Brookfield RVT-type (шпиндель: № 27). Поскольку термоплавкий вязкий клей становится подходящим для использования при низкотемпературном нанесении покрытия, и,

кроме того, для него становятся простыми однородное нанесение покрытия даже на нетканые материалы и проникновение в них, в случае попадания вязкости расплава в пределы вышеупомянутого диапазона термопластичный вязкий клей будет подходящим для использования в продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов.

[0157]

На продукцию одноразового использования, предназначенную для санитарно-гигиенических материалов, особых ограничений не накладывают, но ее примеры включают бумажные пленки, гигиенические прокладки, гигиенические подстилки для домашних животных, больничные рубашки и одежду медперсонала во время хирургической операции.

[0158]

Способ получения клеевой композиции

Клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, может быть получена в результате перемешивания вышеупомянутой блок-сополимерной композиции с веществом, придающим клейкость, и мягчителем и по мере надобности другими компонентами при использовании хорошо известного способа. На способ перемешивания особых ограничений не накладывают, но его примеры включают способ гомогенного перемешивания блок-сополимерной композиции, вещества, придающего клейкость, и мягчителя под воздействием нагревания при использовании смесителя, замесочной машины и тому подобного.

[0159]

Температура при перемешивании предпочтительно находится в диапазоне от 130°C до 220°C, более предпочтительно от 140°C до 210°C, а еще более предпочтительно от 150°C до 200°C. В случае температуры при перемешивании, составляющей 130°C и более, вероятными будут возможность достаточного расплавления блок-сополимерной композиции и обеспечение улучшения диспергирования. Кроме того, в случае температуры при перемешивании, составляющей 220°C и менее, вероятными будут выпаривание низкомолекулярных компонентов шивателя и вещества,

придающего клейкость, и возможность предотвращения ухудшения адгезионной способности.

[0160]

Способ нанесения покрытия из клеевой композиции

На способ нанесения покрытия из вязкого клея особенных ограничений не накладывают до тех пор, пока он будет способен обеспечивать получение продуктов в виде целевых объектов, и его примеры включают способ нанесения покрытия из раствора, при котором клеевую композицию растворяют в растворителе и наносят в виде покрытия, и способ нанесения покрытия из расплава и тому подобное, при которых клеевую композицию расплавляют и наносят в виде покрытия.

[0161]

В их числе с точек зрения загрязнения окружающей среды и легкости нанесения покрытия предпочтительным является способ нанесения покрытия из расплава. Способ нанесения покрытия из расплава грубо подразделяется на контактное нанесение и бесконтактное нанесение. Термин «контактное нанесение» относится к способу нанесения, при котором во время нанесения термоплавкого клея эжектор вводят в контакт с элементом или пленкой. Кроме того, термин «бесконтактное нанесение» относится к способу нанесения, при котором во время нанесения термоплавкого клея эжектор не вводят в контакт с элементом или пленкой. На способ контактного нанесения особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают нанесение покрытия при использовании устройства для нанесения покрытия через щелевую головку, нанесение покрытия при использовании устройства для нанесения покрытия валиком, фильерное нанесение покрытия, нанесение пористого покрытия, при котором нанесение покрытия проводят при получении пор, и нанесение покрытия по трафарету. Кроме того, на способ бесконтактного нанесения особенных ограничений не накладывают, но его примеры включают нанесение спирального покрытия, при котором клей может быть нанесен по спирали при использовании воздуха в ходе периодического нанесения покрытия или непрерывного нанесения покрытия, нанесение покрытия омега или нанесение покрытия при контроле

шва, при котором клей может быть нанесен в форме волны, распылительное нанесение покрытия при использовании щелевой головки и поливочное распылительное нанесение покрытия, при котором нанесение покрытия может быть проведено в форме плоскости, нанесение точечного покрытия, при котором покрытие может быть нанесено в форме точки, нанесение полосового покрытия, при котором покрытие может быть нанесено линейно, нанесение покрытия из вспенивающегося расплава, при котором производят вспенивание расплава, нанесение покрытия на нитевидный материал и распылительное нанесение покрытия, при котором покрытие наносят из аэрозоля.

[0162]

В обычных термоплавках клеях, характеризующихся неудовлетворительной термостойкостью, компоненты легко подвергаются фазовому разделению в высокотемпературных резервуарах. Фазовое разделение даже создает причину закупоривания фильтров резервуара и транспортировочной трубы. В данном отношении клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, характеризуется хорошей термостойкостью и гомогенно расплавляется в высокотемпературном резервуаре в диапазоне от 100 до 220°C и обеспечивает для композиции подавление фазового разделения.

[0163]

В производственных технологических линиях продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, термоплавкий клей в общем случае наносят на различные типы элементов (например, ткань, вату, нетканый материал, полиолефиновую пленку и тому подобное) продукции одноразового использования. При нанесении термоплавкий клей может быть использован в результате эжектирования из различных типов эжекторов.

[0164]

Термоплавкий вязкий клей для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, является подходящим для использования при нанесении

спирального покрытия. Он является удивительно подходящим для использования при изготовлении продукции одноразового использования, где термоплавкий вязкий клей может быть нанесен в виде широкого покрытия в результате распылительного нанесения покрытия. Для термоплавкого клея, способного быть нанесенным в виде широкого покрытия, ширина покрытия может быть отрегулирована до получения узкого покрытия в результате регулирования давления горячего воздуха.

[0165]

В случае наличия трудностей с нанесением термоплавкого вязкого клея в виде широкого покрытия потребуются несколько распылительных сопел в целях получения достаточной площади поверхности клея, что приводит к получению неподходящего для использования неравномерного производства продукции одноразового использования, имеющей сравнительно небольшой размер, такой как прокладки для приема мочи, и продукции одноразового использования, имеющей сложные профили.

[0166]

Поэтому термоплавкий вязкий клей для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, соответствующих настоящему варианту осуществления, вследствие обеспечения возможности нанесения широкого покрытия в ходе нанесения спирального покрытия является подходящим для использования в продукции одноразового использования.

[0167]

Термоплавкий вязкий клей для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, соответствующих настоящему варианту осуществления, вследствие хорошей пригодности для нанесения покрытия при температуре, составляющей 150°C и менее, является подходящим для использования при изготовлении продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов. В случае нанесения термоплавкого клея в виде покрытия при высокой температуре вследствие подверженности

полиолефиновых (предпочтительно полиэтиленовых) пленок, представляющих собой материалы основы продукции одноразового использования, расплавлению или термической усадке внешний вид продукции одноразового использования в значительной степени повредится. В случае нанесения термоплавкого вязкого клея в виде покрытия при температуре, составляющей 150°C и менее, внешний вид полиолефиновых (предпочтительно полиэтиленовых) пленок и нетканых материалов, представляющих собой материалы основы продукции одноразового использования, почти что не изменится, а внешний вид продукции не повредится.

[0168]

Термоплавкий вязкий клей для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, соответствующих настоящему варианту осуществления, вследствие превосходной пригодности для использования при высокоскоростном нанесении покрытия является подходящим для использования при изготовлении продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, за короткий период времени. В случае нанесения термоплавкого вязкого клея в виде покрытия на материал основы, транспортируемый с высокой скоростью, при использовании способа нанесения покрытия, относящегося к контактному типу, в некоторых случаях будет происходить разрыв материала основы вследствие воздействия трения. Термоплавкий вязкий клей для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, соответствующих настоящему варианту осуществления, вследствие пригодности для использования при нанесении спирального покрытия, что представляет собой один тип бесконтактного нанесения покрытия, является подходящим для использования при высокоскоростном нанесении покрытия и делает возможным улучшение эффективности производства продукции одноразового использования. Кроме того, термоплавкий вязкий клей для продукции одноразового использования, предназначенной для санитарно-гигиенических материалов, соответствующих настоящему варианту осуществления,

который является подходящим для использования при высокоскоростном нанесении покрытия, демонстрирует отсутствие искаженного рисунка покрытия.

[0169]

Области применения

Клеевая композиция, соответствующая настоящему варианту осуществления, характеризуется хорошими растворимостью, пригодностью для нанесения покрытия, стабильностью и поверхностью выпуска, демонстрирует превосходные липкость и прочность склеивания и обнаруживает хороший баланс между данными характеристиками вязкого клея. В результате наилучшего применения данных признаков клеевая композиция может быть использована для различных типов лент и этикеток с клеем, склеивающим при надавливании, самоклеящихся тонких пластин, самоклеящихся листов, листов и пленок для защиты поверхности, основ для фиксирования различных типов легких формованных изделий из пластмассы, основ для фиксирования ковров, основ для фиксирования керамических плиток, клеев и тому подобного и может быть подходящим для использования образом применена, в частности, для лент с клеем, склеивающим при надавливании, листов и пленок с клеем, склеивающим при надавливании, этикеток с клеем, склеивающим при надавливании, листов и пленок для защиты поверхности и вязких клеев санитарно-гигиенического назначения.

Примеры

[0170]

Ниже в настоящем документе настоящее изобретение будет подробно описываться при использовании конкретных примеров и сравнительных примеров, но настоящее изобретение следующими далее примерами не ограничивается. В данном случае в следующих далее примерах и сравнительных примерах измерения характеристик и физических свойств полимеров проводили при использовании следующих далее методов.

[0171]

(1): Свойства блок-сополимерной композиции

(1-1) Среднемассовая молекулярная масса

Среднемассовые молекулярные массы компонента (А), и компонента (В) определяли при использовании калибровочной кривой (полученной при использовании пиковых молекулярных масс стандартных полистиролов), определенной в результате проведения измерения для коммерчески доступного стандартного полистирола и при базировании на молекулярных массах пиков на хроматограмме. Программное обеспечение, используемое для измерений, представляло собой HLC-8320EcoSEC collected; а программное обеспечение, используемое для анализа, представляло собой HLC-8320 analysis. В качестве компонента (А) определяли пик, при этом данный пик характеризовался наименьшей молекулярной массой верха пика в диапазоне молекулярной массы, соответствующем 30000 и более, и демонстрировал долю своей площади по отношению к совокупной площади пиков блок-сополимерной композиции, составляющую 0,1 и более; и пик определяли как компонент (В), при этом данный пик характеризовался вершиной пика в диапазоне молекулярной массы, который соответствовал большей величине в сопоставлении с тем, что имело место для вышеупомянутой вершины пика компонента (А), и соответствовал 60000 и более, и демонстрировал долю своей площади по отношению к совокупной площади пиков, составляющую 0,1 и более.

Условия проведения измерений

ГПХ: HLC-8320GPC (что изготавливают в компании Tosoh Corp.)

Детектор: рефрактометрический

Чувствительность детектирования: 3 мВ/мин

Шаг отбора образцов: 600 мсек

Колонка: TSKgel superHZM-N (6 мм - внутренний диаметр × 15 см), 4 колонки (что изготавливают в компании Tosoh Corp.)

Растворитель: THF (тетрагидрофуран)

Скорость течения: 0,6 мм/мин

Концентрация: 0,5 мг/мл

Температура колонки: 40°C

Вводимый объем: 20 мкл

[0172]

(1-2) Уровни содержания компонента (А), и компонента (В)

Долю площади пика компонента (А) по отношению к совокупной площади пиков кривой элюирования, измеренной в вышеупомянутой позиции (1-1), определяли в качестве уровня содержания компонента (А). Кроме того, долю площади пика компонента (В) по отношению к совокупной площади пиков кривой элюирования, измеренной в вышеупомянутой позиции (1-1), определяли в качестве уровня содержания компонента (В). В данном случае долю площади определяли в результате вертикального деления в точках перегиба каждого пика при использовании программного обеспечения для анализа HLC-8320 analysis.

[0173]

(1-3) Уровень содержания звена винилароматического мономера (стирола)

Определенное количество блок-сополимерной композиции, полученной в примерах получения, растворяли в хлороформе; и при использовании ультрафиолетового спектрометра (UV-2450, что изготавливают в компании Shimadzu Corp.), измеряли интенсивность пика в области длины волны поглощения (262 нм), приписываемой компоненту в виде винилароматического соединения (стирола) в растворе. Исходя из полученной интенсивности пика при использовании калибровочной кривой рассчитывали уровень содержания звена винилароматического мономера (стирола).

[0174]

(1-4) Уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) до гидрирования и степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера

Уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) до гидрирования и степень гидрирования ненасыщенных групп в звеньях сопряженного диенового мономера измеряли в следующих далее условиях при использовании анализа спектра ядерного магнитного резонанса (ЯМР).

[0175]

В результате добавления к реакционному раствору до реакции гидрирования большого количества метанола осаждали и извлекали блок-сополимер. После этого полученный блок-сополимер экстрагировали при использовании ацетона и подвергали высушиванию в вакууме. Это использовали в качестве образца для измерений по методу  $^1\text{H}$ -ЯМР и измеряли уровень содержания винильных связей.

[0176]

В результате добавления к реакционному раствору после реакции гидрирования большого количества метанола осаждали и извлекали частично гидрированный блок-сополимер. После этого полученный частично гидрированный блок-сополимер экстрагировали при использовании ацетона и подвергали высушиванию в вакууме. Это использовали в качестве образца для измерений по методу  $^1\text{H}$ -ЯМР и измеряли степень гидрирования.

[0177]

Условия проведения измерения по методу  $^1\text{H}$ -ЯМР представляли собой нижеследующее.

Условия проведения измерений

Прибор для измерений: JNM-LA400 (что изготавливают в компании JEOL Ltd.)

Растворитель: дейтерированный хлороформ

Образец для измерений: отобранные продукты из полимера до и после гидрирования

Концентрация образца: 50 мг/мл

Частота наблюдения: 400 МГц

Репер для химического сдвига: TMS (тетраметилсилан)

Задержка импульса: 2,904 сек

Число раз сканирования: 64 раза

Ширина импульса:  $45^\circ$

Температура измерения:  $26^\circ\text{C}$

[0178]

(2) Измерения физических свойств клеевой композиции

«Оценка  $\alpha$  для клеевой композиции»

(2-1) Вязкость расплава клеевой композиции (оценка  $\alpha$ )

Вязкости расплава клеевых композиций, полученных в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае измеряли при 180°C при использовании вискозиметра Брукфильда (DV-III, что изготавливают в компании Brookfield Engineering Laboratories, Inc.). Вязкость расплава оценивали на основании полученного значения в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о, Δ, x в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

Вязкость расплава (Па·сек)  $\leq 100$ : о

100 < вязкость расплава (Па·сек)  $\leq 500$ : Δ

500 < вязкость расплава (Па·сек): x

[0179]

(2-2) Клейкость (клейкость по шарик) клеевой композиции (оценка α)

Клейкость клеевых композиций, полученных в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае оценивали при использовании клейкости по шарик под уклоном в соответствии с документом JIS-Z0237. Говоря конкретно, получали треугольный аппарат (угол уклона: 30°), снабженный начальной точкой, где располагали жесткий шарик, и траекторией разгона (100 мм), продолжающейся от начальной точки, и клейкой лицевой поверхностью (100 мм) ленты с клеем, склеивающим при надавливании, продолжающейся от траектории разгона на уклоне; и жесткий шарик (размер: от 1/32 до 32/32 дюйма (от 0,79 до 25,4 мм)) скатывали вниз с верхней начальной точки уклона в направлении клейкой лицевой поверхности на нижней части уклона. Численное значение 32, помноженное на размер шарика, задержанного на клейкой лицевой поверхности, называли «числом шарика»; и измеряли максимальное число шарика, при котором соответствующий шарик задерживался на каждой клейкой лицевой поверхности. На основании полученного числа шарика оценивали клейкость клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о, Δ, x в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$8 \leq \text{число шарика} : \circ$

$3 \leq \text{число шарика} < 8 : \Delta$

Число шарика  $< 3 : \times$

[0180]

(2-3) Прочность склеивания клеевой композиции (оценка  $\alpha$ )

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, шириной в 25 мм, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае наносили на пластину из стали SUS и отслаивали при скорости отслаивания 300 мм/мин; и в данный момент времени измеряли усилие отслаивания при  $180^\circ$ . На основании полученного усилия отслаивания оценивали прочность склеивания клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде  $\circ$ ,  $\Delta$ ,  $\times$  в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$10 \leq \text{усилие отслаивания (н/10 мм)} : \circ$

$5 \leq \text{усилие отслаивания (н/10 мм)} < 10 : \Delta$

Усилие отслаивания (н/10 мм)  $< 5 : \times$

[0181]

(2-4) Удерживающая способность клеевой композиции (оценка  $\alpha$ )

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае наносили на площади поверхности контакта 25 мм  $\times$  15 мм на пластине из стали SUS. После этого при  $50^\circ\text{C}$  к ленте с клеем, склеивающим при надавливании, прикладывали нагрузку в 1 кг в перпендикулярном направлении сверху вниз и измеряли время вплоть до проскальзывания ленты с клеем, склеивающим при надавливании. На основании полученного времени оценивали удерживающую способность клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде  $\odot$ ,  $\circ$ ,  $\Delta$ ,  $\times$  в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$4000 \leq \text{время (мин)} : \odot$

$1000 \leq \text{время (мин)} < 4000 : \circ$

500 ≤ время (мин) < 1000: Δ

Время (мин) < 500: ×

[0182]

«Оценка β для клеевой композиции»

(2-5) Вязкость расплава клеевой композиции (оценка β)

Вязкости расплава клеевых композиций, полученных в примерах и сравнительных примеров, в каждом случае измеряли при 160°C при использовании вискозиметра Брукфильда (DV-III, что изготавливают в компании Brookfield Engineering Laboratories, Inc.). Вязкость расплава оценивали на основании полученного значения в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде ◎, ○, Δ, × в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

Вязкость расплава (Па·сек) ≤ 5: ◎

5 < вязкость расплава (Па·сек) ≤ 10: ○

10 < вязкость расплава (Па·сек) ≤ 20: Δ

20 < вязкость расплава (Па·сек): ×

[0183]

(2-6) Клейкость (клейкость по шарик) клеевой композиции (оценка β)

Клейкости клеевых композиций, полученных в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае оценивали при использовании клейкости по шарик под уклоном в соответствии с документом JIS-Z0237. Говоря конкретно, получали треугольный аппарат (угол уклона: 30°), снабженный начальной точкой, где располагали жесткий шарик, и траекторией разгона (100 мм), продолжающейся от начальной точки, и клейкой лицевой поверхностью (100 мм) ленты с клеем, склеивающим при надавливании, продолжающейся от траектории разгона на уклоне; и жесткий шарик (размер: от 1/32 до 32/32 дюйма (от 0,79 до 25,4 мм)) скатывали вниз с верхней начальной точки уклона в направлении клейкой лицевой поверхности на нижней части уклона. Численное значение 32, помноженное на размер шарика, задержанного на клейкой лицевой поверхности, называли «числом

шарика»; и измеряли максимальное число шарика, при котором соответствующий шарик задерживался на каждой клейкой лицевой поверхности. На основании полученного числа шарика оценивали клейкость клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о, Δ, х в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

18 ≤ число шарика: о

9 ≤ число шарика < 18: Δ

Число шарика < 9: х

[0184]

(2-7) Клейкость (клейкость по петле) клеевой композиции (оценка β)

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, при 300 мм в длину × 15 мм в ширину, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае получали в форме петли. Полученную в форме петли ленту с клеем, склеивающим при надавливании, приклеивали на площади поверхности контакта 15 мм × 50 мм, в течение времени приклеивания 3 сек и при скорости приклеивания 500 мм/мин на пластине из стали SUS. После этого ленту с клеем, склеивающим при надавливании, отслаивали от пластины из стали SUS при скорости отслаивания 500 мм/мин при одновременном измерении усилия отслаивания. На основании полученного усилия отслаивания (н/15 мм) оценивали клейкость клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о, Δ, х в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

13 ≤ усилие отслаивания (н/15 мм): о

5 ≤ усилие отслаивания (н/15 мм) < 13: Δ

Усилие отслаивания (н/15 мм) < 5: х

[0185]

(2-8) Прочность склеивания клеевой композиции (оценка β)

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, шириной в 25 мм, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае наносили на пластину из стали SUS и отслаивали при скорости отслаивания 300 мм/мин; и в данный момент времени

измеряли усилие отслаивания при  $180^\circ$ . На основании полученного усилия отслаивания оценивали прочность склеивания клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о,  $\Delta$ , x в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$7 \leq \text{усилие отслаивания (н/10 мм)} : \text{о}$

$5 \leq \text{усилие отслаивания (н/10 мм)} < 7 : \Delta$

$\text{Усилие отслаивания (н/10 мм)} < 5 : \text{x}$

[0186]

(2-9) Удерживающая способность клеевой композиции (оценка  $\beta$ )

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае наносили на площади поверхности контакта 25 мм  $\times$  15 мм на пластине из стали SUS. После этого при  $50^\circ\text{C}$  к ленте с клеем, склеивающим при надавливании, прикладывали нагрузку в 1 кг в перпендикулярном направлении сверху вниз и измеряли время вплоть до проскальзывания ленты с клеем, склеивающим при надавливании. На основании полученного времени оценивали удерживающую способность клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде  $\odot$ , о,  $\Delta$ , x в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$100 \leq \text{время (мин)} : \odot$

$40 \leq \text{время (мин)} < 100 : \text{о}$

$15 \leq \text{время (мин)} < 40 : \Delta$

$\text{Время (мин)} < 15 : \text{x}$

[0187]

«Оценка  $\gamma$  для клеевой композиции»

(2-10) Вязкость расплава клеевой композиции (оценка  $\gamma$ )

Вязкости расплава клеевых композиций в каждом случае измеряли при  $140^\circ\text{C}$  при использовании вискозиметра Брукфильда (DV-III, что изготавливают в компании Brookfield Engineering Laboratories, Inc.). Вязкость расплава оценивали на основании

полученного значения в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде  $\odot$ ,  $\circ$ ,  $\Delta$ ,  $\times$  в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

Вязкость расплава (Па·сек)  $\leq 5$ :  $\odot$

$5 <$  вязкость расплава (Па·сек)  $\leq 15$ :  $\circ$

$15 <$  вязкость расплава (Па·сек)  $\leq 35$ :  $\Delta$

$35 <$  вязкость расплава (Па·сек):  $\times$

[0188]

(2-11) Клейкость (клейкость по петле) клеевой композиции (оценка  $\gamma$ )

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, при 250 мм в длину  $\times$  15 мм в ширину, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае получали в форме петли. Полученную в форме петли ленту с клеем, склеивающим при надавливании, приклеивали на площади поверхности контакта 15 мм  $\times$  50 мм, в течение времени приклеивания 3 сек и при скорости приклеивания 500 мм/мин на пластине из стали SUS. После этого ленту с клеем, склеивающим при надавливании, отслаивали от пластины из стали SUS при скорости отслаивания 500 мм/мин при одновременном измерении усилия отслаивания. На основании полученного усилия отслаивания (н/15 мм) оценивали клейкость клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде  $\circ$ ,  $\Delta$ ,  $\times$  в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$22 \leq$  усилие отслаивания (н/15 мм):  $\circ$

$18 \leq$  усилие отслаивания (н/15 мм)  $< 22$ :  $\Delta$

Усилие отслаивания (н/15 мм)  $< 18$ :  $\times$

[0189]

(2-12) Прочность склеивания клеевой композиции (оценка  $\gamma$ )

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, шириной в 25 мм, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае наносили на пластину из стали SUS и отслаивали при скорости отслаивания 300 мм/мин; и в данный момент времени измеряли усилие отслаивания при  $180^\circ$ . На основании полученного усилия отслаивания оценивали прочность склеивания клеевой

композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о, Δ, × в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$15 \leq \text{усилие отслаивания (н/10 мм)} : \text{о}$

$12 \leq \text{усилие отслаивания (н/10 мм)} < 15 : \Delta$

$\text{Усилие отслаивания (н/10 мм)} < 12 : \times$

[0190]

(2-13) Удерживающая способность клеевой композиции (оценка γ)

Ленты с клеем, склеивающим при надавливании, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае наносили на площадь поверхности контакта 25 мм × 15 мм на пластине из стали SUS. После этого при 40°C к ленте с клеем, склеивающим при надавливании, прикладывали нагрузку в 1 кг в перпендикулярном направлении сверху вниз и измеряли время вплоть до проскальзывания ленты с клеем, склеивающим при надавливании. На основании полученного времени оценивали удерживающую способность клеевой композиции в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде ⊙, о, Δ, × в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

$250 \leq \text{время (мин)} : \odot$

$100 \leq \text{время (мин)} < 250 : \text{о}$

$15 \leq \text{время (мин)} < 100 : \Delta$

$\text{Время (мин)} < 15 : \times$

[0191]

«Качественные оценки для клеевой композиции»

(2-14) Способность загрязнения склеиваемых материалов

При измерении прочностей склеивания клеевых композиций в вышеупомянутых позициях (2-3), (2-8), и (2-12) проводили измерение площади поверхности клеевой композиции, остающейся на поверхности пластины из стали SUS после отслаивания ленты с клеем, склеивающим при надавливании. Рассчитывали долю площади поверхности клеевой композиции, остающейся на поверхности пластины из стали SUS, по отношению к площади поверхности

нанесения ленты с клеем, склеивающим при надавливании; и на основании данной доли оценивали способность загрязнения склеиваемых материалов в соответствии со следующими далее критериями. Оценку ранжировали в виде о, Δ, × в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

Доля площади поверхности (%) ≤ 5: о

5 < доля площади поверхности (%) ≤ 10: Δ

10 < доля площади поверхности (%): ×

[0192]

(2-15) Цветостойкость во время переработки

Клеевые композиции, полученные в примерах и сравнительных примерах, в каждом случае получали в форме листа и нагревали при 180°C в течение 180 минут в шестеренчатой печи. Измеряли изменчивость значения  $b$  для клеевой композиции до и после нагревания при использовании дифференциального колориметра (ZE-2000, что изготавливают в компании Nippon Denshoku Industries Co., Ltd.), и оценивали цветостойкость в соответствии со следующими далее критериями. В данном случае при измерении листы укладывали в стопку в целях получения толщины в 8 мм. Оценку ранжировали в виде о, Δ, × в порядке от наилучшего варианта к наихудшему.

Разница значений  $b$  до и после нагревания ≤ 15: о

15 < разница значений  $b$  до и после нагревания ≤ 45: Δ

45 < разница значений  $b$  до и после нагревания: ×

[0193]

(3) Получение катализатора гидрирования

В примерах и сравнительных примерах, описываемых ниже, катализатор гидрирования, используемый при получении гидрированной блок-сополимерной композиции, получали при использовании следующего далее способа. Атмосферу реакционной емкости, снабженной перемешивающим устройством, замещали азотом и сюда загружали 1 л высушенного и очищенного циклогексана. После этого добавляли 100 ммоль хлорида бис(η<sup>5</sup>-циклопентадиенил) титана. Кроме того, при достаточном

перемешивании добавляли н-гексановый раствор, содержащий 200 ммоль триметилалюминия, и давали возможность реакции протекать при комнатной температуре в течение приблизительно 3 дней. Тем самым, получали катализатор гидрирования.

[0194]

(4) Получение блок-сополимерных композиций

Пример получения 1

Автоклав из нержавеющей стали с внутренним объемом 40 л, имеющий перемешивающее устройство и рубашку, очищали и высушивали и его атмосферу замещали азотом; загружали 5960 г циклогексана; и через рубашку перепускали теплую воду, а температуру содержимого задавали на уровне 65°C. После этого в автоклав добавляли циклогексановый раствор, содержащий 0,243 г N,N,N',N'-тетраметилэтилендиамина (ниже в настоящем документе обозначаемого также как «TMEDA»), и 3,59 г н-бутиллития. Затем в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий 484 г стирола, для стимулирования полимеризации стирола. В данный момент времени степень превращения стирола при полимеризации составляла 100%. Последовательно в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий 2,541 г 1,3-бутадиена, для стимулирования сополимеризации 1,3-бутадиена. В данный момент времени степень превращения бутадиена при полимеризации составляла 100%. В заключение, в автоклав добавляли 1,55 г диметоксидиметилсилана в качестве агента реакции сочетания для стимулирования прохождения реакции сочетания. После добавления агента реакции сочетания для дезактивирования добавляли 0,67 г метанола для получения, тем самым, блок-сополимерного раствора.

[0195]

Затем к полученному блок-сополимерному раствору добавляли катализатор гидрирования, полученный в соответствии с представленным выше описанием изобретения, в количестве 100 ч./млн. при выражении через Ti катализатора гидрирования при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера; и проводили реакцию гидрирования при давлении водорода 0,8 МПа при средней

температуре 92°C. Степень гидрирования звена сопряженного диенового мономера, содержащегося в полученной блок-сополимерной композиции, составляла 25,0% (моль.).

[0196]

После реакции гидрирования к блок-сополимерному раствору добавляли октадецил-3-(3,5-ди-трет-бутил-4-гидроксифенил)пропионат в количестве 0,3 массовой части при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера и в достаточной мере проводили перемешивание. После этого при нагревании удаляли растворитель для получения, тем самым, блок-сополимерной композиции из примера получения 1. Результаты измерения для полученной блок-сополимерной композиции продемонстрированы в таблице 1.

[0197]

Примеры получения от 2 до 6 и от 8 до 10

Блок-сополимерные композиции из примеров получения от 2 до 6 и от 8 до 10 получали так же, как и в примере получения 1, за исключением изменения количеств используемых соединения TMEDA, н-бутиллития, стирола, 1,3-бутадиена, агента реакции сочетания и метанола и типа агента реакции сочетания, соответственно, на то, что указывается в таблице 1. Результаты измерения для каждой полученной блок-сополимерной композиции продемонстрированы в таблице 1.

[0198]

Пример получения 7

Автоклав из нержавеющей стали с внутренним объемом 40 л, имеющий перемешивающее устройство и рубашку, очищали и высушивали и его атмосферу замещали азотом; загружали циклогексан; и через рубашку перепускали теплую воду, а температуру содержимого задавали на уровне 65°C. После этого в автоклав добавляли циклогексановый раствор, содержащий соединение TMEDA и н-бутиллитий. Затем в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий стирол, для стимулирования полимеризации стирола. В данный момент времени степень превращения стирола при полимеризации составляла 100%.

Последовательно в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий 1,3-бутадиен, для стимулирования сополимеризации 1,3-бутадиена. В данный момент времени степень превращения бутадиена при полимеризации составляла 100%. Кроме того, последовательно в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий стирол, для стимулирования сополимеризации стирола. В данный момент времени степень превращения стирола при полимеризации составляла 100%. После этого для дезактивирования добавляли метанол для получения, тем самым, блок-сополимерного раствора.

[0199]

Затем полученный полимер подвергали воздействию реакции гидрирования при использовании катализатора гидрирования на основе Ti, описанного в японском выложенном патенте № 59-133203. Степень гидрирования звена сопряженного диенового мономера (бутадиена), содержащегося в полученной блок-сополимерной композиции, составляла 70% (моль.). В данном случае количества реагентов, используемых в реакции, в совокупности продемонстрированы в таблице 1.

[0200]

К полученному блок-сополимерному раствору добавляли октадецил-3-(3,5-ди-трет-бутил-4-гидроксифенил)пропионат в количестве 0,3 массовой части при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера и в достаточной мере проводили перемешивание. После этого при нагревании удаляли растворитель для получения, тем самым, блок-сополимерной композиции из примера получения 7. Результаты измерения для полученной блок-сополимерной композиции продемонстрированы в таблице 1.

[0201]

Пример получения 11

Компонент (А)

Автоклав из нержавеющей стали с внутренним объемом 40 л, имеющий перемешивающее устройство и рубашку, очищали и высушивали и его атмосферу замещали азотом; загружали циклогексан; и через рубашку перепускали теплую воду, а

температуру содержимого задавали на уровне 65°C. После этого в автоклав добавляли циклогексановый раствор соединения TMEDA и н-бутиллития. Затем в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий стирол, для стимулирования полимеризации стирола. В данный момент времени степень превращения стирола при полимеризации составляла 100%. Последовательно в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий 1,3-бутадиен, для стимулирования сополимеризации 1,3-бутадиена. В данный момент времени степень превращения бутадиена при полимеризации составляла 100%. После этого для дезактивирования добавляли метанол для получения, тем самым, блок-сополимерного раствора.

[0202]

Затем к полученному блок-сополимерному раствору добавляли катализатор гидрирования, полученный в соответствии с представленным выше описанием изобретения, в количестве 100 ч./млн. при выражении через Ti катализатора гидрирования при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера; и проводили реакцию гидрирования при давлении водорода 0,8 МПа при средней температуре 82°C. В данном случае количества реагентов, использующихся в реакции, в совокупности продемонстрированы в таблице 1.

[0203]

К полученному блок-сополимерному раствору добавляли октадецил-3-(3,5-ди-трет-бутил-4-гидроксифенил)пропионат в количестве 0,3 его массовой части при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера и в достаточной мере проводили перемешивание. В результате проведения вышеупомянутой операции получали компонент (А) из примера получения 11.

[0204]

Компонент (В)

Автоклав из нержавеющей стали с внутренним объемом 40 л, имеющий перемешивающее устройство и рубашку, очищали и высушивали и его атмосферу замещали азотом; загружали циклогексан; и через рубашку перепускали теплую воду, а

температуру содержимого задавали на уровне 65°C. После этого в автоклав добавляли циклогексановый раствор соединения TMEDA и н-бутиллития. Затем в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий стирол, для стимулирования полимеризации стирола. В данный момент времени степень превращения стирола при полимеризации составляла 100%. Последовательно в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий 1,3-бутадиен, для стимулирования сополимеризации 1,3-бутадиена. В данный момент времени степень превращения бутадиена при полимеризации составляла 100%. Кроме того, последовательно в автоклав непрерывно добавляли циклогексановый раствор, содержащий стирол, для стимулирования сополимеризации стирола. В данный момент времени степень превращения стирола при полимеризации составляла 100%. После этого для дезактивирования добавляли метанол для получения, тем самым, блок-сополимерного раствора.

[0205]

Затем к полученному блок-сополимерному раствору добавляли катализатор гидрирования, полученный в соответствии с представленным выше описанием изобретения, в количестве 100 ч./млн. при выражении через Ti катализатора гидрирования при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера; и проводили реакцию гидрирования при давлении водорода 0,8 МПа при средней температуре 85°C. В данном случае количества реагентов, используемых в реакции, в совокупности продемонстрированы в таблице 1.

[0206]

К полученному блок-сополимерному раствору добавляли октадецил-3-(3,5-ди-трет-бутил-4-гидроксифенил)пропионат в количестве 0,3 массовой части при расчете на 100 массовых частей блок-сополимера и в достаточной мере проводили перемешивание. В результате проведения вышеупомянутой операции получали компонент (В) из примера получения 11.

[0207]

В заключение, перемешивали блок-сополимерный раствор,

содержащий вышеупомянутый компонент (А), и блок-сополимерный раствор, содержащий вышеупомянутый компонент (В), и при нагревании удаляли растворитель для получения, тем самым, блок-сополимерной композиции из примера получения 11. Результаты измерения для полученной блок-сополимерной композиции продемонстрированы в таблице 1.

[0208]

Примеры получения 12-15 и 18-20

Блок-сополимерные композиции из примеров получения от 12 до 15 и от 18 до 20 получали так же, как и в примере получения 1, за исключением изменения количеств используемых реагентов. Результаты измерения для каждой полученной блок-сополимерной композиции продемонстрированы в таблице 2.

[0209]

Примеры получения 16 и 17

Модифицированные амином блок-сополимерные композиции из примеров получения 16 и 17 получали так же, как и в примере получения 1, за исключением использования тетраглицидил-1,3-бисаминометилциклогексана вместо диметоксидиметилсилана и изменения количеств используемых реагентов. Результаты измерений для каждой полученной блок-сополимерной композиции продемонстрированы в таблице 2.

[0210]

[Таблица 1]

		Пример получения											
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	
Циклопексан (г)		5960	5960	5960	5960	5960	5960	5960	5960	5960	5960	5960	5960
TMEDA (г)		0,243	0,281	0,344	0,327	0,425	0,193	0,146	0,254	0,254	0,176	0,976	0,085
н-бутиллитий (г)		3,59	3,97	4,7	4,51	5,59	3,04	2,52	3,7	3,7	2,9	11,7	1,85
Стирол (г)		484	453	576	576	454	917	300	484	484	454	454	235
1,3-бутадиен (г)		2541	2571	2457	2457	2570	2141	2457	2542	2542	2570	2570	2570
Стирол (г)		-	-	-	-	-	-	280	-	-	-	-	220
Наименование агента реакции сочетания		DMDMS	DMDMS	TCMS	TMMS	TMS	DMDMS	-	DMDMS	DMDMS	TMMS	-	-
Агент реакции сочетания (г)		1,55	3,16	1,02	1,37	1,83	1,03	-	1,8	1,79	1,33	-	-
Метанол (г)		0,67	0,53	1,33	1,33	1,66	0,76	0,81	0,84	0,84	0,58	5,38	0,47
Уровень содержания звена винилароматического мономера (% (масс.))		16	15	19	18	15	30	19	16	16	15	15	
Количество винильных связей до гидрирования звена сопряженного диенового мономера (% (моль.))		24	23	23	23	20	24	40	45	31	28	25	
Компонент (А)	Структура	Ar-D	Ar-D	Ar-D	Ar-D	Ar-D	Ar-D	-	Ar-D	Ar-D	Ar-D	Ar-D	-
	Уровень содержания (% (масс.))	65	35	70	74	71	72	-	60	60	60	60	-

	Среднемассовая молекулярная масса	123000	108000	85000	90000	71000	140000	-	117000	117000	170000	31000	-
Компонент (В)	Структура	(Ar-D) <sub>2</sub> X	(Ar-D) <sub>2</sub> X	(Ar-D) <sub>3</sub> -X	(Ar-D) <sub>3</sub> -X	(Ar-D) <sub>4</sub> -X	(Ar-D) <sub>2</sub> X	Ar-D-Ar	(Ar-D) <sub>2</sub> X	(Ar-D) <sub>2</sub> X	(Ar-D) <sub>3</sub> -X	-	Ar-D-Ar
	Уровень содержания (%) (масс.)	35	65	30	26	29	28	100	40	40	28	-	40
	Среднемассовая молекулярная масса	251000	220000	250000	260000	265000	271000	200000	236000	236000	510000	-	350000
Соотношение среднемассовых молекулярных масс		2,0	2,0	2,9	2,9	3,7	1,9	-	2,0	2,0	3	11,3	
Степень гидрирования звена сопряженного диенового мономера (%) (моль.)		25	44	30	28	30	28	70	0	85	27	25	

DMDMS: диметоксидиметилсилан

TCMS: трихлорметилсилан

TMMS: триметоксиметилсилан

TMS: тетраметоксисилан

[0211]

[Таблица 2]

	Пример получения									
	12	13	14	15	16	17	18	19	20	

Наименование агента реакции сочетания		DMDMS	DMDMS	DMDMS	DMDMS	TG	TG	DMDMS	DMDMS	DMDMS
Уровень содержания звена винилароматического мономера (% (масс.))		16	16	25	25	16	25	25	16	25
Количество винильных связей до гидрирования звена сопряженного диенового мономера (% (моль.))		22	27	23	23	20	23	35	15	27
Компонент (А)	Структура	Ar-D								
	Уровень содержания (% (масс.))	60	60	70	70	60	65	70	60	60
	Среднемассовая молекулярная масса	97000	96000	70000	75000	93000	70000	70000	92000	56000
Компонент (В)	Структура	(Ar-D) <sub>2</sub> X								
	Уровень содержания (% (масс.))	40	40	30	30	27	27	30	40	40
	Среднемассовая молекулярная масса	195000	192000	140000	150000	190000	140000	140000	185000	110000
	Структура	-	-	-	-	(Ar-D) <sub>3</sub> X	(Ar-D) <sub>3</sub> X	-	-	-
	Уровень	-	-	-	-	5	5	-	-	-

	содержания (%) (масс.)									
	Среднемассовая молекулярная масса	-	-	-	-	270000	215000	-	-	-
	Структура	-	-	-	-	(Ar-D) <sub>4</sub> X	(Ar-D) <sub>4</sub> X	-	-	-
	Уровень содержания (%) (масс.)	-	-	-	-	8	3	-	-	-
	Среднемассовая молекулярная масса	-	-	-	-	362700	275000	-	-	-
	Соотношение среднемассовых молекулярных масс	2,0	2,0	2,0	2,0	2-3,9	2-3,9	2,0	2,0	2,0
	Степень гидрирования звена сопряженного диенового мономера (%) (моль.)	55	55	24	55	55	45	24	55	55

DMDMS: диметоксидиметилсилан

TG: тетраглицидил-1,3-бисаминометилциклогексан

[0212]

## Пример 1

100 массовых частей блок-сополимерной композиции из примера получения 1, 140 массовых частей продукта Quintone R100 (что изготавливают в компании Zeon Corp.) в качестве вещества, придающего клейкость, 30 массовых частей продукта Diana Process Oil NS-90S (что изготавливают в компании Idemitsu Kosan Co., Ltd.) в качестве мягчителя и 1 массовую часть 2-трет-бутил-6-(3-трет-бутил-2-гидрокси-5-метилбензил)-4-метилфенилакрилата в качестве стабилизатора перемешивали и замешивали в расплаве при 180°C в течение 30 мин при использовании работающей под давлением двухлопастной замесочной машины (тип: D0.3-3, Moriyama Manufacturing Co., Ltd.) для получения, тем самым, однородной клеевой композиции, относящейся к термоплавному типу.

[0213]

Кроме того, полученную клеевую композицию охлаждали до комнатной температуры и растворяли в толуоле. Полученный толуольный раствор наносили в виде покрытия на пленку из полимера PET (толщина: 50 мкм) при использовании аппликатора, а после этого выдерживали при комнатной температуре в течение 30 мин и в печи при 70°C в течение 7 мин для полного выпаривания толуола для изготовления, тем самым, ленты с клеем, склеивающим при надавливании, при толщине клейкого слоя в 50 мкм.

[0214]

Измеряли физические свойства вышеупомянутой клеевой композиции («Оценка  $\alpha$  для клеевой композиции» и «Качественная оценка для клеевой композиции») при использовании данных клеевой композиции и ленты с клеем, склеивающим при надавливании. Данные результаты продемонстрированы в таблице 4.

[0215]

## Примеры 2-15 и сравнительные примеры 1- 5

Изготавливали клеевые композиции и ленты с клеем, склеивающим при надавливании, которые оценивали в отношении их физических свойств, соответственно, в результате проведения той

же самой операции, что и в примере 1, за исключением использования соответствующих блок-сополимерных композиций из примеров получения от 2 до 6 и от 12 до 20 и от 7 до 11 вместо блок-сополимерной композиции из примера получения 1. Данные результаты продемонстрированы в таблице 4. В данном случае даже тогда, когда при проведении замешивания в течение 30 мин крутящий момент не становился стабилизированным, замешивание проводили вплоть до достижения постоянного крутящего момента.

[0216]

#### Примеры 16-18

Клеевые композиции и ленты с клеем, склеивающим при надавливании, изготавливали, соответственно, в результате проведения той же самой операции, что и в примере 1, за исключением использования 100 массовых частей соответствующих полимерных композиций, полученных в результате перемешивания композиций из примеров полимерных смесей от 1 до 3, описанных в таблице 3, вместо 100 массовых частей блок-сополимерной композиции из примера получения 1. Результаты оценки для каждой полученной клеевой композиции и ленты с клеем, склеивающим при надавливании, продемонстрированы в таблице 4.





[0218]

(A1) Негидрированные блок-сополимеры на основе стирола-изопрена (степень гидрирования: 0%)

(A1-1) D1161 (что изготавливают в компании Krayton Polymers LLC)

SI/SIS, уровень содержания стирола: 16% (масс.), уровень содержания полимера SI: 20% (масс.)

(A1-2) Quintac 3520 (что изготавливают в компании Zeon Corp.)

SI/SIS, уровень содержания стирола: 15% (масс.), уровень содержания полимера SI: 78% (масс.)

(A1-3) Quintac 3460 (что изготавливают в компании Zeon Corp.)

SI/(SI)<sub>3</sub>X, уровень содержания стирола: 25% (масс.), уровень содержания полимера SI: 30% (масс.)

\* В вышеупомянутых формулах «S» представляет собой стирольный блок; «I» представляет собой изопреновый блок; а «X» представляет собой остаток агента реакции сочетания.

[0219]

(A2) Гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена (степень гидрирования: 100%)

(A2-1) G1726 (что изготавливают в компании Krayton Polymers LLC)

SEB/SEBS, уровень содержания стирола: 30% (масс.), уровень содержания полимера SEB: 70% (масс.)

(A2-2) G1652 (что изготавливают в компании Krayton Polymers LLC)

SEBS, уровень содержания стирола: 30% (масс.), уровень содержания полимера SEB: 0%

(A2-3) G1657 (что изготавливают в компании Krayton Polymers LLC)

SEB/SEBS, уровень содержания стирола: 13% (масс.), уровень содержания полимера SEB: 30% (масс.)

\* В вышеупомянутых формулах «S» представляет собой стирольный блок; «E» представляет собой этиленовый блок; а «B» представляет собой бутадиеновый блок.

[0220]

(A3) Гидрированные блок-сополимеры на основе стирола-изопрена (степень гидрирования: 100%)

(A3-1) Septon 2063 (что изготавливают в компании Kuraray Co., Ltd.)

(A3-2) Septon 2007 (что изготавливают в компании Kuraray Co., Ltd.)

(A3-3) Septon 4033 (что изготавливают в компании Kuraray Co., Ltd.)

[0221]

(A4) Статистический сополимер на основе стирола-бутадиена (степень гидрирования: 0%)

(A4-1) Asaprene 1205 (что изготавливают в компании Asahi Kasei Chemicals Corp.)

Уровень содержания стирола: 25% (масс.)

[0222]

(A5) Негидрированные блок-сополимеры на основе стирола-бутадиена (степень гидрирования: 0%)

(A5-1) Tafprene T438 (что изготавливают в компании Asahi Kasei Chemicals Corp.)

SB/SBS, уровень содержания стирола: 35% (масс.)

(A5-2) Tafprene T439 (что изготавливают в компании Asahi Kasei Chemicals Corp.)

SB/SBS, уровень содержания стирола: 40% (масс.)

(A5-3) Tafprene A (что изготавливают в компании Asahi Kasei Chemicals Corp.)

Уровень содержания стирола: 40% (масс.)

\* В вышеупомянутых формулах «S» представляет собой стирольный блок; а «B» представляет собой бутадиеновый блок.

[0223]

Кроме того, ленты с клеем, склеивающим при надавливании, (шириной в 25 мм), полученные в примерах 7, 17 и 18, в каждом случае наносили на пластину из стали SUS, обеспечивали их выдерживание в состоянии покоя в шестеренчатой печи при 60°C в течение 3 дней, а после этого их вынимали. После обеспечения

выдерживания ленты в состоянии покоя в термостатической камере в течение одной ночи измеряли прочность склеивания после ускоренного испытания на нагревание (отслаивание при  $180^{\circ}$ , скорость отслаивания: 300 мм/мин), которую сопоставляли с прочностью склеивания (оценка  $\alpha$ ). Прочность склеивания после ускоренного испытания на нагревание была большей, чем прочность склеивания (оценка  $\alpha$ ); и в отношении степени изменчивости лента с клеем, склеиваемым при надавливании, полученная в примере 17, занимала в данном случае наинизшее положение, а лента с клеем, склеиваемым при надавливании, полученная в примере 7, занимала в данном случае наивысшее положение. Таким образом, как это было продемонстрировано, добавление гидрированного винилароматического эластомера приводило к улучшению стабильности прочности склеивания.

[0224]

[Таблица 4]

Оценка качественная оценка	$\alpha,$	Пример																	Сравнительный пример					
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	1	2	3	4	5
Блок- сополимерная композиция (№ примера получения)		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	7	8	9	10	11
Пример полимерной смеси		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1	2	3	-	-	-	-	-
Вязкость расплава (Па·сек)		o	$\Delta$	o	o	o	$\Delta$	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	x	$\Delta$	x	x	x
Клейкость по шарику (№)		o	o	$\Delta$	$\Delta$	o	$\Delta$	o	$\Delta$	$\Delta$	$\Delta$	x	$\Delta$	o	o									
Прочность склеивания (н/10 мм)		o	o	$\Delta$	$\Delta$	$\Delta$	$\Delta$	o	o	o	o	o	o	$\Delta$	o	o	o	o	o	$\Delta$	x		$\Delta$	$\Delta$
Низкая способность загрязнения		o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	$\Delta$	o	o	o	o	o	$\Delta$	x	$\Delta$	o	o
Удерживающая способность (мин)		$\Delta$	o	o	o	$\Delta$	o	o	o	o	o	o	o	o	$\Delta$	o	o	o	o	o	x	$\Delta$	o	o
Цветостойкость		o	o	$\Delta$	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o	o

[0225]

Примеры 19-21 и сравнительный пример 6

Клеевые композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, изготавливали, соответственно, в результате проведения той же самой операции, что и в примере 1, за исключением использования соответствующих блок-сополимерных композиций из примеров получения 12, 15, 17 и 9 вместо блок-сополимерной композиции из примера получения 1, перемешивания при расчете на 100 массовых частей блок-сополимерной композиции 200 массовых частей продукта Quintone R100 (что изготавливают в компании Zeon Corp.) в качестве вещества, придающего клейкость, и 100 массовых частей продукта Diana Process Oil PW-90 (что изготавливают в компании Idemitsu Kosan Co., Ltd.) в качестве мягчителя и изготовления ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, имеющей клейкий слой с толщиной в 25 мкм, на пленке из полимера PET при 38 мкм. Свойства каждого из полученных клеевой композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, оценивали при использовании вышеупомянутых методов («Оценка  $\beta$  для клеевой композиции» и «Качественная оценка для клеевой композиции»), и результаты по ним продемонстрированы в таблице 5.

[0226]

Пример 22

Клеевую композицию и ленту с клеем, склеиваемым при надавливании, изготавливали, соответственно, в результате проведения той же самой операции, что и в примере 20, за исключением использования продукта Arkon M100 (Arakawa Chemical Industries, Ltd.) вместо вещества, придающего клейкость, в виде продукта Quintone R100 из примера 20. Результаты оценки полученных клеевой композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, продемонстрированы в таблице 5.

[0227]

Примеры 23-31

Клеевые композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, изготавливали, соответственно, в результате

проведения той же самой операции, что и в примере 19, за исключением использования 100 массовых частей соответствующих полимерных композиций из примеров полимерных смесей от 4 до 12 вместо 100 массовых частей блок-сополимерной композиции из примера получения 12. Результаты оценки для каждой из полученных клеевой композиции и ленты с клеем, склеивающим при надавливании, продемонстрированы в таблице 5.

[0228]

Кроме того, для клеевых композиций, полученных в примерах 20 и от 23 до 25, в каждом случае обеспечивали выдерживание в состоянии покоя в термостатической камере в течение одной ночи и проводили проверку на твердость при использовании пальца; клеевая композиция, полученная в примере 24, была наиболее мягкой, а мягкость клеевых композиций, полученных в примерах 23, 25 и 20, увеличивалась в данном порядке. Как это было обнаружено, могли быть получены клеевые композиции, характеризующиеся гибкостью при одновременном выдерживании баланса для эксплуатационных характеристик вязкого клея.

[0229]

Кроме того, ленты с клеем, склеивающим при надавливании, (25 мм в ширину), полученные в примерах 20 и от 26 до 31, в каждом случае наносили на пластину из стали SUS304 и обеспечивали их выдерживание в состоянии покоя в стеклянном ящике вне помещения в течение одного месяца для проведения, тем самым, испытания на воздействие солнечного света. Для ленты обеспечивали выдерживание в термостатической камере в течение одной ночи и измеряли прочность склеивания после воздействия солнечного света (отслаивание при 180°, скорость отслаивания: 300 мм/мин), которую сопоставляли с прочностью склеивания (оценка  $\beta$ ); ленты с клеем, склеивающим при надавливании, полученные в примерах от 26 до 31, продемонстрировали меньшие изменчивости прочности склеивания в сопоставлении с лентой с клеем, склеивающим при надавливании, полученной в примере 20. Как это было продемонстрировано, добавление гидрированного винилароматического эластомера приводило к улучшению

атмосферостойкости при одновременном выдерживании хороших эксплуатационных характеристик вязкого клея.

[0230]



[0231]

Примеры 32-36 и сравнительный пример 7

Клеевые композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, изготавливали, соответственно, в результате проведения той же самой операции, что и в примере 1, за исключением использования соответствующих блок-сополимерных композиций из примеров получения 9, 12, 13, 14, 15 и 17 вместо блок-сополимерной композиции из примера получения 1 и перемешивания при расчете на 100 массовых частей блок-сополимерной композиции 300 массовых частей продукта Arkon M100 в качестве вещества, придающего клейкость, и 100 массовых частей продукта Diana Process Oil PW-90 в качестве мягчителя. Свойства каждой из полученных клеевой композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, оценивали при использовании вышеупомянутых методов («Оценка  $\gamma$  для клеевой композиции» и «Качественная оценка для клеевой композиции»), и результаты по ним продемонстрированы в таблице 6.

[0232]

Удерживающая способность в примере 34 составляла 530 мин, а удерживающая способность в примере 35 превышала 800 мин. Как это было продемонстрировано, клеевая композиция, содержащая полярную группу, введенную в нее, продемонстрировала хорошую адгезию к склеиваемым материалам, характеризующимся высоким значением параметра растворимости поверхности.

[0233]

Примеры 37-49

Клеевые композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, изготавливали, соответственно, в результате проведения той же самой операции, что и в примере 32, за исключением использования 100 массовых частей соответствующих полимерных композиций из примеров полимерных смесей от 13 до 25 вместо 100 массовых частей блок-сополимерной композиции из примера 32. Результаты оценки каждой из полученных клеевой композиции и ленты с клеем, склеиваемым при надавливании, продемонстрированы в таблице 6.

[0234]

Кроме того, клеевые композиции, полученные в примерах 34 и от 39 до 45, в каждом случае располагали в металлической банке и обеспечивали их выдерживание в состоянии покоя при 180°C в течение двух дней после размещения крышки. Клеевые композиции из примеров от 39 до 45 продемонстрировали меньшие изменчивости вязкости расплава до и после нагревания. Как это было продемонстрировано, добавление гидрированного винилароматического эластомера могло улучшить термостойкость клеевой композиции.

[0235]

Кроме того, после формования в каждом случае из клеевых композиций, полученных в примерах 33 и 46, пластины толщиной в 2 см и обеспечения их выдерживания в состоянии покоя в термостатической камере в течение одной ночи была предпринята попытка разрезания формованной клеевой композиции ножницами, клеевая композиция из примера 46 могла быть разрезана. Как это было продемонстрировано, добавление сопряженного диенового каучука приводило к улучшению характеристик разрезания.

[0236]

[Таблица 6]

Оценка качественная оценка	γ, Пример																		Сравни- тельный пример
	32	33	34	35	36	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	
Блок- сополимерная композиция (№ примера получения)	12	14	15	17	13	15	15	15	15	15	15	15	15	15	14	14	14	14	9
Пример полимерной смеси	-	-	-	-	-	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	-
Вязкость расплава (Па·сек)	○	◎	◎	◎	○	○	○	○	○	△	○	◎	○	△	◎	◎	◎	△	×
Клейкость по петле	△	△	△	△	△	○	○	△	△	△	△	△	△	△	△	△	○	△	×
Прочность склеивания (н/10 мм)	○	△	△	△	○	△	△	△	△	△	△	△	△	△	△	△	△	○	△
Низкая способность загрязнения	○	○	○	○	△	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×
Удерживающая способность (мин)	△	△	◎	◎	△	△	△	○	○	◎	△	△	◎	◎	△	○	○	◎	◎
Цветостойкость	○	○	○	△	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	△	△	△	△	○

[0237]

Настоящая заявка базируется на японской патентной заявке (японской патентной заявке № 2014-010803), поданной в японское патентное ведомство 23 января 2014 года, содержание которой во всей своей полноте посредством ссылки включается в настоящий документ.

**Применимость в промышленности**

[0238]

Клеевая композиция, соответствующая настоящему изобретению, может быть использована для различных типов лент с клеем, склеивающим при надавливании, листов с клеем, склеивающим при надавливании, пленок с клеем, склеивающим при надавливании, этикеток с клеем, склеивающим при надавливании, самоклеящихся тонких пластин, самоклеящихся листов, листов для защиты поверхности, пленок для защиты поверхности, санитарно-гигиенических материалов, основ для фиксирования различных типов легких формованных изделий из пластмассы, основ для фиксирования ковров, основ для фиксирования керамических плиток, клеев и тому подобного и демонстрирует применимость в промышленности в качестве вязкого клея, в частности, для лент с клеем, склеивающим при надавливании, листов с клеем, склеивающим при надавливании, пленок с клеем, склеивающим при надавливании, этикеток с клеем, склеивающим при надавливании, листов для защиты поверхности, пленок для защиты поверхности и санитарно-гигиенических материалов.

**ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ**

1. Блок-сополимерная композиция, содержащая 20% (масс.), и более, и 90% (масс.), и менее компонента (А), и 10% (масс.), и более, и 80% (масс.), и менее компонента (В),

где компонент (А) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую от 30000, и более, до 190000, и менее; и

компонент (В) представляет собой блок-сополимер, содержащий полимерный блок (Ar), в основном содержащий звено винилароматического мономера, и полимерный блок (D), в основном содержащий звено сопряженного диенового мономера, и имеющий среднемассовую молекулярную массу, составляющую от 60000, и более, до 500000, и менее,

где степень гидрирования звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) находится в диапазоне от 10 до 80% (моль.); и

соотношение между среднемассовой молекулярной массой компонента (В), и среднемассовой молекулярной массой компонента (А) находится в диапазоне от 1,3 до 10.

2. Блок-сополимерная композиция по п. 1, где уровень содержания винильных связей звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В) до гидрирования составляет 5% (моль.), и более, но менее, чем 30% (моль.) при расчете на совокупное количество звеньев сопряженного диенового мономера в компоненте (А), и компоненте (В).

3. Блок-сополимерная композиция по пп. 1 или 2, где компонент (В) содержит блок-сополимер, содержащий, по меньшей мере, два полимерных блока (Ar) и, по меньшей мере, один полимерный блок (D).

4. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-3, где среднемассовая молекулярная масса компонента (В) составляет 100000, и более, и 500000, и менее.

5. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-

4, где компонент (B) содержит блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами  $Ar-D-Ar$ ,  $(Ar-D)_2X$ ,  $D-Ar-D-Ar$  и/или  $(D-Ar-D)_2X$  (где X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации).

6. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-4, где компонент (B) содержит трехразветвленный блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами  $(D-Ar-D)_3-X$  и/или  $(Ar-D)_3-X$  (где X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации).

7. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-4, где компонент (B) содержит четырехразветвленный блок-сополимер (блок-сополимеры), описываемый формулами  $(D-Ar-D)_4-X$  и/или  $(Ar-D)_4-X$  (где X представляет собой остаток агента реакции сочетания или остаток инициатора полимеризации).

8. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 5-7, где агент реакции сочетания включает безгалогенный агент реакции сочетания.

9. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-8, где уровень содержания звеньев винилароматического мономера составляет 5% (масс.), и более, и менее, чем 35% (масс.) при расчете на 100% (масс.) компонента (A), и компонента (B).

10. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-9, где уровень содержания звеньев винилароматического мономера составляет 5% (масс.), и более, и менее, чем 30% (масс.) при расчете на 100% (масс.) компонента (A), и компонента (B).

11. Блок-сополимерная композиция по любому одному из пп. 1-10, где уровень содержания звеньев винилароматического мономера составляет 5% (масс.), и более, и менее, чем 20% (масс.) при расчете на 100% (масс.) компонента (A), и компонента (B).

12. Клеевая композиция, содержащая:

100 массовых частей блок-сополимерной композиции по любому одному из пп. 1-11;

от 1 до 600 массовых частей вещества, придающего клейкость; и

от 0 до 200 массовых частей мягчителя.

13. Клеевая композиция по п. 12, где содержание вещества, придающего клейкость, составляет от 50 до 400 массовых частей.

14. Клеевая композиция по пп. 12 или 13, содержащая, кроме того, винилароматический эластомер.

15. Клеевая композиция по любому одному из пп. 12-14, содержащая, кроме того, каучук сопряженного диена.

16. Клеевая композиция по любому одному из пп.12- 15, содержащая, кроме того, натуральный каучук.

По доверенности