

明 細 書

発明の名称：

粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物

技術分野

[0001] 本発明は、粘接着剤用ブロック共重合体組成物及びそれを含む粘接着剤組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、溶液型及びホットメルト型の、接着剤や粘着剤のベースポリマーとして、ビニル芳香族単量体ー共役ジエン単量体系ブロック共重合体（例えば、ＳＢＳ：スチレンーブタジエンスチレンブロック共重合体、ＳＩＳ：スチレンーイソプレンーすチレンブロック共重合体）が広く使用されている。

例えば、特許文献１及び特許文献２において、ＳＢＳを用いた接着剤組成物又は粘着剤組成物が開示されている。しかしながら、ＳＢＳやＳＩＳを用いた接着剤組成物又は粘着剤組成物は、加工性と、粘着力等の粘接着剤特性とのバランスが不十分であり、溶融粘度が高く、溶解性、加熱安定性、塗工性、吐出安定性及び表面肌の面においても不十分である。

[0003] これらの改良方法として、特許文献３や非特許文献１には、トリブロック共重合体とジブロック共重合体とを含有する接着剤組成物が開示されている。

[0004] また、特許文献４において、特定の２官能性カップリング剤（脂肪族系モノエステル、特定のジハロゲン化合物）でカップリングさせて得られるブロック共重合体を含む粘着剤組成物が開示されている。

[0005] さらに、特許文献５において、ビニル芳香族炭化水素化合物と共役ジエン系化合物とのブロック共重合体を特定の割合で水添したブロック共重合体と、粘着付与剤とを含む組成物が開示されている。

[0006] またさらに、改良方法として、特許文献６及び特許文献７において、２個以上のブロック共重合体組成物を含む粘接着剤組成物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

- [0007] 特許文献1：特公昭44－17037号公報
特許文献2：特公昭56－49958号公報
特許文献3：特開昭61－278578号公報
特許文献4：特開昭61－261310号公報
特許文献5：特公平5－69874号公報
特許文献6：特開2000－309767号公報
特許文献7：特開2004－137297号公報

非特許文献

- [0008] 非特許文献1：石井逸朗、「S I Sベース粘着剤の品質設計」、接着、高分子刊行会、1988年（昭和63年）1月25日、第32巻、第1号、27頁～28頁

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] しかしながら、特許文献3、4、及び非特許文献1に開示された粘着剤組成物及び接着剤組成物では、上記各種性能面の改良効果は不十分である。また、特許文献5に開示された組成物では、粘着力と粘着性とのバランス性能が不十分であり、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌の点においても不十分である。さらに、特許文献6及び特許文献7に開示されている粘接着剤組成物も、粘着力と粘着性とのバランス性能の改善に加えて、溶解性、塗工性、及び吐出安定性及び表面肌の観点において、なお一層の改善が要望されている。

- [0010] そこで、本発明は、上述した従来技術の問題点に鑑みなされたものであって、粘着力や粘着性等の粘接着剤特性バランスに優れ、熔融粘度が低く、優れた溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤組成物となる、粘接着剤用ブロック共重合体組成物、及び該粘接着剤用ブロック共重合

体組成物を含む粘接着剤組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、特定の構造、組成、及び数平均分子量を有する2個のブロック共重合体と粘着付与剤及び軟化剤からなる粘接着剤組成物であれば、上記課題を効果的に解決することを見出し、本発明を完成するに至った。

[0012] すなわち、本発明は、以下の通りである。

[1]

成分(a)：ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック(A)と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック(B)と、を含有し、数平均分子量が10,000以上、60,000以下であるブロック共重合体：50質量%以上、90質量%以下と、

成分(b)：ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック(A)と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック(B)と、を含有し、数平均分子量が120,000を超えて、200,000以下であるブロック共重合体：10質量%以上、50質量%以下と、を含み、

前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が25～50質量%であり、

15質量%トルエン溶液における粘度が10～40 mPa・sであり、

前記成分(a)に対する前記成分(b)の数平均分子量比が2.0～4.0である、

粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

[2]

前記成分(a)は、式(A-B)によって表されるジブロック共重合体であり、

前記成分(b)は、式(A-B)₃X(Xは、カップリング剤の残基又は重合開始剤の残基を示す。)によって表される3分岐ブロック共重合体である、

前項[1]に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

〔３〕

前記成分（ａ）に対する前記成分（ｂ）の前記数平均分子量比が２．３～３．６である、前項〔１〕又は〔２〕に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

〔４〕

前記成分（ａ）：８０質量％を超えて、９０質量％以下と、
前記成分（ｂ）：１０質量％以上、２０質量％未満と、を含む、前項〔１〕～〔３〕のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

〔５〕

前記成分（ａ）：５０質量％以上、８０質量％以下と、
前記成分（ｂ）：２０質量％以上、５０質量％以下と、を含む、前項〔１〕～〔３〕のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

〔６〕

前記成分（ｂ）の数平均分子量が１３０，０００以上、２００，０００以下である、前項〔１〕～〔５〕のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

〔７〕

前記成分（ｂ）の数平均分子量が１６０，０００以上、２００，０００以下である、前項〔１〕～〔６〕のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

〔８〕

前項〔１〕～〔７〕のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物：１００質量部と、
粘着付与剤：１００～４００質量部と、
軟化剤：５０～１５０質量部と、
を、含有する、粘接着剤組成物。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、粘着力や粘着性等の粘接着剤特性の性能バランスに優れ

、溶融粘度が低く、優れた溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤組成物となる、粘接着剤用ブロック共重合体組成物、及び該粘接着剤用ブロック共重合体組成物を含む粘接着剤組成物を実現することができる。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明を実施するための形態（以下、「本実施形態」という）について詳細に説明する。なお、本発明は、以下の実施形態に制限されるものではなく、その要旨の範囲内で種々変形して実施することができる。

[0015] [粘接着剤用ブロック共重合体組成物]

本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物は、

成分（a）：ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）と、を含有し、数平均分子量が10,000以上、60,000以下であるブロック共重合体：50質量%以上、90質量%以下と、

成分（b）：ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）と、を含有し、数平均分子量が120,000を超え、200,000以下であるブロック共重合体：10質量%以上、50質量%以下と、を含み、

前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が25～50質量%であり、

15質量%トルエン溶液における粘度が10～40 mPa・sであり、

前記成分（a）に対する前記成分（b）の数平均分子量比が2.0～4.0である。

[0016] （構造）

本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物は、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）：（以下、「重合体ブロックA」、又は「A」と表すこともある。）と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）：（以下、「重合体ブロックB」、又は「B」と表すこともある。）と、を具備するブロック共重合体を含む。

[0017] 「ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）」とは、ビニル芳香族単量体単位を50質量%以上、好ましくは70質量%以上、より好ましくは85質量%以上、さらに好ましくは95質量%以上含有する重合体ブロックAを意味する。また、「共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）」とは、共役ジエン単量体単位を50質量%以上、好ましくは70質量%以上、より好ましくは85質量%以上含有する重合体ブロックBを意味する。以下、各成分についてより詳細に説明する。

[0018] [ブロック共重合体]

（成分（a））

成分（a）は、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）と共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）とを含有し、数平均分子量が10,000以上、60,000以下であるブロック共重合体であり、粘接着剤用ブロック共重合体組成物に50質量%以上、90質量%以下含まれる。成分（a）のブロック共重合体の数平均分子量の範囲は、10,000以上、60,000以下であり、好ましくは20,000以上、60,000以下であり、より好ましくは25,000以上、60,000以下であり、さらに好ましくは30,000以上、60,000以下であり、最も好ましくは40,000以上、60,000以下である。成分（a）の数平均分子量は実施例において記載する方法により求めることができる。成分（a）の数平均分子量がこのような範囲であれば、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。

[0019] また、成分（a）の構造としては、特に限定されないが、具体的には、 $(A-B)_n$ 、 $(A-B)_nA$ 、 $(B-A)_nB$ 等が挙げられる。このなかでも、式（A-B）によって表されるジブロック共重合体であることが好ましい。成分（a）がこのような構造を有することにより、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる傾向にある。なお、上記式におい

て n は 1 以上の整数であり、好ましくは 1 ～ 5 の整数である。

[0020] (成分 (b))

成分 (b) は、ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック (A) と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック (B) と、を含有し、数平均分子量が 120,000 を超え、200,000 以下であるブロック共重合体であり、粘接着剤用ブロック共重合体組成物に 10 質量%以上、50 質量%以下含まれる。成分 (b) のブロック共重合体の数平均分子量の範囲は、120,000 を超え、200,000 以下であり、好ましくは 130,000 以上、200,000 以下であり、より好ましくは 160,000 以上、200,000 以下であり、又は、好ましくは 140,000 以上、190,000 以下であり、より好ましくは 160,000 以上、190,000 以下である。成分 (b) の数平均分子量は実施例において記載する方法により求めることができる。成分 (b) の数平均分子量がこのような範囲であれば、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。

[0021] 特に成分 (b) のブロック共重合体の数平均分子量の範囲が、16 万以上であり、成分 (b) の含有量が 20 質量%以上 50 質量%以下であると、吐出安定性、表面肌がより向上する傾向にあり、好ましい。

[0022] また、成分 (b) の構造としては、特に限定されないが、具体的には、 $(A-B)_mX$ 、 $(B-A)_mX$ 等が挙げられる。このなかでも、式 $(A-B)_3X$ によって表される 3 分岐ブロック共重合体（以下、「3 官能ブロック共重合体」ともいう。）であることが好ましい。なお、上記式において、 X は、カップリング剤の残基又は重合開始剤の残基を示し、 m は 2、3、4 のいずれかの整数である。3 分岐ブロック共重合体を含有することにより、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる傾向にある。

[0023] 成分 (b) が式： $(A-B)_3X$ で表される 3 分岐ブロック共重合体である

ことにより、成分（b）が式： $(A-B)_2X$ で表される2分岐（2官能カップリング）ブロック共重合体と比べて、粘接着剤組成物において、粘着性が優れる傾向にある。また、成分（b）が式： $(A-B)_3X$ で表される3分岐ブロック共重合体であることにより、一般式： $(A-B)_nX$ （ $n=4$ 以上）で表される多官能カップリングブロック共重合体と比べて、粘接着剤組成物において、粘着力が優れる傾向にある。

[0024] 成分（a）と成分（b）の組み合わせとしては、特に限定されないが、具体的には、成分（a）は、式（A-B）によって表されるジブロック共重合体であり、成分（b）は、式（A-B）₃Xによって表される3分岐ブロック共重合体であることが好ましい。後に詳述するが、このような成分（a）と成分（b）の組み合わせは、成分（a）の一部を3官能カップリング剤等を用いてカップリングすることで得ることができる。具体的には、成分（a）は全てカップリングせずに残ったジブロック共重合体として得られ、成分（b）はカップリング後の3分岐ブロック共重合体として得られる。このような成分（a）と成分（b）の組み合わせを含有することにより、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる傾向にある。

[0025] なお、前記3分岐ブロック共重合体が、成分（b）として粘接着剤用ブロック共重合体組成物に含まれることは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）の分子量分布曲線のピークの位置の違いにより判断することができる。具体的には、後述する3分岐ブロック共重合体（成分（b））は、ジブロック共重合体（成分（a））の数平均分子量の2.3～3.6倍となる傾向にあるため、成分（b）／成分（a）の数平均分子量比が2.3～3.6であることにより、成分（a）：ジブロック共重合体と成分（b）3分岐ブロック共重合体が粘接着剤用ブロック共重合体組成物に含まれることを判断することができる。

[0026] 成分（a）、（b）を構成する重合体ブロックAのビニル芳香族炭化水素化合物としては、特に限定されないが、具体的には、スチレン、 α -メチル

スチレン、*p*-メチルスチレン及び*p*-ターシャルブチルスチレン等のアルキルスチレン；*p*-メトキシスチレン等のアルコキシスチレン；ビニルナフタレン等が挙げられる。このなかでも、ビニル芳香族炭化水素としては、スチレンが好ましい。ビニル芳香族炭化水素化合物は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0027] 成分（a）、（b）を構成する重合体ブロックBの共役ジエン化合物は、共役二重結合を有するジオレフィンであれば特に限定されないが、具体的には、1，3-ブタジエン、2-メチルー1，3-ブタジエン（イソプレン）、2，3-ジメチルー1，3-ブタジエン、1，3-ペンタジエン、1，3-ヘキサジエン等が挙げられる。このなかでも、共役ジエン化合物としては、1，3-ブタジエン、イソプレンが好ましい。共役ジエン化合物は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0028] （ブロック共重合体の含有率）

粘接着剤用ブロック共重合体組成物における各成分の含有率は、成分（a）が50質量%以上、90質量%以下、成分（b）が10質量%以上、50質量%以下の割合である。成分（a）、（b）の数平均分子量及び数平均分子量比が上記範囲であることにより、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。

[0029] ブロック共重合体の含有率は、成分（a）が80質量%を超えて、90質量%以下であり、成分（b）が10質量%以上、20質量%未満であることが好ましく、より好ましくは成分（a）が80質量%を超えて、88質量%以下であり、成分（b）が12質量%以上、20質量%未満であり、さらに好ましくは成分（a）が80質量%を超えて、85質量%以下であり、成分（b）が15質量%以上、20質量%未満である。このようなブロック共重合体の含有率であることにより、臭気と混練後の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の着色とをより抑制できる傾向にある。

[0030] また、本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の中でも、数平均

分子量が10,000以上、60,000以下である成分(a)80質量%を超えて、90質量%以下と、数平均分子量が120,000を超えて、200,000以下である成分(b)10質量%以上、20質量%未満とを含む粘接着剤ブロック共重合体組成物は、本実施形態の効果に加えて、粘接着剤組成物を溶融混練して作製する場合、臭気が少なく、粘接着剤組成物の変色も極めて少ない傾向にある。ブロック共重合体の組み合わせは、好ましくは数平均分子量が25,000以上、60,000以下である成分(a)80質量%を超えて、88質量%以下、数平均分子量が140,000以上、200,000以下である成分(b)12質量%以上、20質量%未満であり、より好ましくは数平均分子量が40,000以上、60,000以下である成分(a)80質量%を超えて、85質量%以下、数平均分子量が160,000以上、190,000以下である成分(b)15質量%以上、20質量%未満である。このようなブロック共重合体の含有率であることにより、臭気と混練後の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の着色とをより抑制できる傾向にある。

[0031] また、ブロック共重合体の含有率は、成分(a)が50質量%以上、80質量%以下であり、成分(b)が20質量%以上、50質量%以下が好ましく、成分(a)が55質量%以上、80質量%以下であり、成分(b)が20質量%以上、45質量%以下がより好ましく、成分(a)が60質量%以上、75質量%以下であり、成分(b)が25質量%以上、40質量%以下がさらに好ましい。このようなブロック共重合体の含有率であることにより、溶解性により優れる。

[0032] また、本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の中でも、数平均分子量が10,000以上、60,000以下である成分(a)50質量%以上、90質量%以下と、数平均分子量が160,000を超えて、200,000以下である成分(b)10質量%以上、50質量%以下とを含む粘接着剤ブロック共重合体組成物は、本実施形態の効果に加えて、溶解性により優れ、粘接着剤組成物の塗工時での吐出安定性がより優れ、表面肌もより

滑らかとなる傾向にある。また、数平均分子量が10,000以上、60,000以下である成分(a)50質量%以上、80質量%以下と、数平均分子量が160,000を超えて、200,000以下である成分(b)20質量%以上、50質量%以下とを含む粘接着剤ブロック共重合体組成物が、より好ましい。

[0033] ブロック共重合体の組み合わせは、好ましくは数平均分子量が40,000以上、60,000以下である成分(a)50質量%以上、80質量%以下、数平均分子量が160,000以上、200,000以下である成分(b)20質量%以上、50質量%以下であり、より好ましくは数平均分子量が45,000以上、60,000以下である成分(a)60質量%以上、80質量%以下、数平均分子量が160,000以上、190,000以下である成分(b)20質量%以上、40質量%以下であり、さらに好ましくは数平均分子量が45,000以上、60,000以下である成分(a)65質量%以上、80質量%以下、数平均分子量が160,000以上、190,000以下である成分(b)20質量%以上、35質量%以下である。

[0034] [成分(a)に対する成分(b)の数平均分子量比]

成分(b)/成分(a)の数平均分子量比の範囲は、2.0~4.0であり、保持力の観点から好ましくは2.2~4.0であり、より好ましくは2.3~3.6であり、さらにより好ましくは2.5~3.5であり、最も好ましくは2.7~3.4である。前述のように、成分(b)が3分岐ブロック共重合体である場合、成分(b)/成分(a)の数平均分子量比は、2.3~3.6となる傾向にある。成分(a)に対する成分(b)の数平均分子量比が上記範囲内であることにより、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、及び表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる傾向にある。

[0035] 数平均分子量比は、成分(a)と成分(b)の数平均分子量より算出することができる。成分(b)/成分(a)の数平均分子量比は後述する実施例において記載する方法により求めることができる。

[0036]〔ビニル芳香族単量体単位の含有量〕

本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物中のビニル芳香族単量体単位の含有量は、25～50質量%であり、好ましくは30～45質量%であり、より好ましくは35～40質量%である。本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体中のビニル芳香族単量体単位の含有量が上記範囲であることにより、優れた粘着性（ループタック）、粘着力を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。特に、ビニル芳香族単量体単位の含有量が、25質量%以上であることにより、優れた粘着力を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られ、50質量%以下であることにより、優れた粘着性を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。粘接着剤用ブロック共重合体中のビニル芳香族単量体単位の含有量は、後述する実施例において記載する方法により測定することができる。

[0037]〔15質量%トルエン溶液における粘度〕

本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の15質量%トルエン溶液における粘度は、10～40 mPa・sであり、好ましくは15～35 mPa・sであり、より好ましくは20～30 mPa・sである。本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体の15質量%トルエン溶液における粘度が上記範囲であることにより、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。特に、15質量%トルエン溶液における粘度が、10 mPa・s以上であることにより、優れた粘着力を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られ、40 mPa・s以下であることにより、優れた粘着性、溶解性、塗工性、吐出安定性、表面肌を有する粘接着剤用ブロック共重合体組成物及び粘接着剤組成物が得られる。粘接着剤用ブロック共重合体の15質量%トルエン溶液における粘度は、後述する実施例において記載する方法により測定することができる。

[0038]（b）成分が多いと溶融粘度が高くなり、（a）成分が多いと溶融粘度が

低くなるが軟化点、クリープが低い粘接着剤用ブロック共重合体組成物が得られる傾向にある。

[0039] 〔共役ジエン化合物のビニル結合量〕

また、本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物中の、共役ジエン化合物のビニル結合量は、20%未満が好ましく、18%未満がより好ましく15%未満がさらに好ましい。共役ジエン化合物のビニル結合量が20%未満であることにより、熱安定性、耐候性に優れた特性が得られる傾向にある。

[0040] 粘接着剤用ブロック共重合体組成物中の共役ジエン化合物のビニル結合量を調整するために、例えば、エーテル類や第三級アミン類等を用いることができる。具体的には、エチレングリコールジメチルエーテル、テトラヒドロフラン、 α -メトキシテトラヒドロフラン、N, N, N', N'-テトラメチルエチレンジアミン等から選ばれる1種又は2種以上の混合物が使用される。これらは、共役ジエンモノマーを投入する前の段階で重合溶媒中に投入しておくことが好ましい。

[0041] ビニル結合量は、例えば、核磁気共鳴装置（BRUKER社製、DPX-400）による測定や、赤外分光光度計（装置名：FT/IR-230；日本分光社製）を用い、ハンプトン法により算出することで求めることができる。

[0042] 〔粘接着剤用ブロック共重合体組成物の製造方法〕

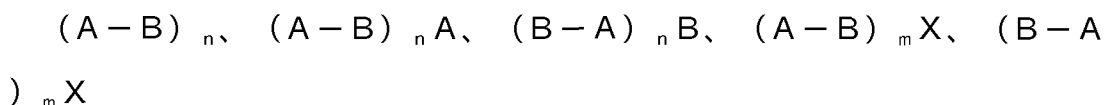
本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物は、例えば、不活性炭化水素溶媒中で、有機リチウム化合物を重合開始剤として、スチレン等のビニル芳香族炭化水素化合物を重合し、次いで、ブタジエン等の共役ジエン化合物を重合させたジブロック共重合体を3官能カップリング反応する方法がある。この際に、カップリングしたポリマーは成分（b）となり、カップリグせずに残ったジブロック共重合体が成分（a）となる。なお、このカップリング反応においてカップリング剤の添加量を制御することにより、成分（a）と成分（b）の含有量を上記所定の範囲に調整することができる。

- [0043] また、粘接着剤用ブロック共重合体組成物は、成分（a）及び（b）を別々に重合しておき、後に混合する方法により得ることもできる。
- [0044] 成分（a）、（b）の分子量は、有機リチウム化合物等の開始剤量を制御することにより調整することができる。重合反応終了後、カップリング反応し、水、アルコール、酸等を添加して活性種を失活し、例えばスチームストリッピング等を行って重合溶媒を分離した後、乾燥することにより成分（a）、（b）を得ることができる。
- [0045] 前記成分（a）、（b）のブロック共重合体の重合方法としては、特に限定されないが、具体的には、配位重合、アニオン重合又はカチオン重合等の重合方法が挙げられる。このなかでも、構造の制御の容易さの点で、アニオン重合が好ましい。
- [0046] アニオン重合によるブロック共重合体成分の製造方法としては、公知の方法を用いることができ、特に限定されないが、具体的には、特公昭36-19286号公報、特公昭43-17979号公報、特公昭46-32415号公報、特公昭49-36975号公報、特公昭48-2423号公報、特公昭48-4106号公報、特公昭56-28925号公報、特開昭59-166518号公報、特開昭60-186577号公報等に記載された方法が挙げられる。
- [0047] 成分（a）、（b）の重合工程において使用する不活性化炭化水素溶媒としては、特に限定されないが、具体的には、ブタン、ペンタン、ヘキサン、イソペンタン、ヘプタン、オクタン、イソオクタン等の脂肪族炭化水素；シクロペンタン、メチルシクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン等の脂環式炭化水素；ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素等の炭化水素溶媒が挙げられる。これらは1種のみを用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよい。
- [0048] また、成分（a）、（b）の重合工程において開始剤として使用する有機リチウム化合物としては、特に限定されないが、具体的には、公知の化合物、例えば、エチルリチウム、プロピルリチウム、n-ブチルリチウム、s e

c-ブチリチウム、tert-ブチリチウム、フェニリチウム、プロペニリチウム、ヘキシリチウム等が挙げられる。特に、n-ブチリチウム、sec-ブチリチウムが好ましい。有機リチウム化合物は、1種のみを用いてもよく、2種以上の混合物を用いてもよい。

[0049] なお、成分(a)、成分(b)は、共役ジエンに由来する不飽和二重結合の一部又は全てを水素添加されたものであってもよい。その水素化方法は特に限定されるものではなく、公知の技術を用いて行うことができる。

[0050] 上述した方法により、成分(a)、(b)は、下記式のいずれかで表されるブロック共重合体として得ることができる。



(上式において、Aはビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロックであり、Bは共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロックである。Xは、カップリング剤の残基又は重合開始剤の残基を示す。また、nは1以上の整数、好ましくは1～5の整数である。mは2、3、4のいずれかの整数である。)

[0051] このなかでも、上記カップリング反応により、ブロック共重合体(a)：式(A-B)と、3分岐ブロック共重合体(b)：一般式： $(A-B)_3 X$ とを製造することが好ましい。

[0052] 前記3分岐ブロック共重合体を得るためのカップリング剤としては、公知のものを使用することができ、特に限定されないが、具体的には、メチル三塩化スズ、トリブチルクロロスズのようなスズ化合物；トリメトキシシラン、トリエトキシシラン、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシランのようなシラン化合物；メチル三塩化ケイ素、トリメチルクロロケイ素のようなハロゲン化ケイ素化合物等が挙げられる。

[0053] また、ブロック共重合体の成分(a)を重合する途中で失活剤を添加して、成分(a)'が含まれてもよい。具体的には、ビニル芳香族単量体単位を重合後、共役ジエン単量体単位の重合中の任意のところで完全に失活させな

いで50質量%以下を失活させる量の失活剤を添加して、一般式(A-B')によって表されるジブロック共重合体を粘接着剤用ブロック共重合体組成物中に20質量%以下含有してもよい。なお、B'は、重合中で失活させられることにより得られた、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロックを示す。一般式(A-B')によって表されるジブロック共重合体を含むことにより、さらに熔融粘度を低下しやすく、かつ、スチレンブロックの割合が多いため、粘着力が向上する傾向にある。

[0054] また、ビニル芳香族単量体単位重合体ブロック(A)を重合するために用いた全ビニル芳香族単量体単位量(質量%)に対するビニル芳香族単量体重重合体ブロック量(質量%)、すなわちブロック率は90%以上が好ましく、95%以上がより好ましく、さらに好ましくは97%以上である。上記の好ましい範囲とすることにより、仕上げ性に優れる粘接着剤用ブロック共重合体組成物が得られる傾向にあり、この粘接着剤用ブロック共重合体組成物を含有する粘接着剤組成物は、粘着力が優れる傾向にある。

[0055] ビニル芳香族単量体重重合体ブロック量は、ブロック共重合体をクロロホルムに溶解し、オスミニウム酸/ターシャルブチルハイドロパーオキサイド溶液を添加して、ブタジエン成分の二重結合を切断する。次に、メタノールを加え、ろ過し、ろ物をクロロホルムに溶解させ、得られた溶液を紫外分光光度計にて、ピーク強度(吸収波長: 262 nm)からブロックスチレン含有量を算出することができる。

[0056] 本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の製造方法においては、必要に応じ、重合開始剤等に由来する金属類を脱灰する工程を採用することができる。

[0057] 本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物の製造方法では、さらに、必要に応じ、酸化防止剤、中和剤、界面活性剤等を添加する工程を採用してもよい。

[0058] 酸化防止剤としては、特に限定されないが、具体的には、後述するものと同様のヒンダードフェノール系化合物、リン系化合物、イオウ系化合物等が

挙げられる。

[0059] 中和剤としては、特に限定されないが、具体的には、各種のステアリン酸金属塩、 ハイドロタルサイト、安息香酸等が挙げられる。

[0060] 界面活性剤としては、特に限定されないが、具体的には、アニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤等が挙げられる。アニオン系界面活性剤としては、特に限定されないが、具体的には、脂肪酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキルアリールスルホン酸塩等が挙げられる。また、ノニオン系界面活性剤としては、特に限定されないが、具体的には、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル等が挙げられる。カチオン系界面活性剤としては、特に限定されないが、具体的には、アルキルアミン塩、第4級アンモニウム塩等が挙げられる。

[0061] 上述のようにして製造できる本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物は、窒素、酸素、ケイ素、リン、硫黄、スズから選ばれる原子を含む極性基含有官能基が粘接着剤用ブロック共重合体に結合した、いわゆる変性重合体や、ブロック共重合体成分を無水マレイン酸等の変性剤で変性した変性ブロック共重合体を含んでもよい。このような変性共重合体は、(a)、(b)成分に対し、公知の変性反応を行うことにより得られる。

[0062] 上述のようにして本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体を構成する成分(a)、(b)のブロック共重合体を製造した後、後述する方法により、ブロック重合体の単離、すなわち仕上げを行う。

[0063] ブロック共重合体(a)、(b)の重合工程は、上述したように不活性炭化水素溶媒中で行うことができる。従って、ブロック共重合体を単離するために、溶媒を除去する。具体的な溶媒を除去する方法としては、スチームストリッピングが挙げられる。スチームストリッピングにより、含水クラムを得て、得られた含水クラムを乾燥することによりブロック共重合体を得ることができる。

[0064] スチームストリッピングにおいては、クラム化剤として界面活性剤を用い

ることが好ましい。そのような界面活性剤としては、特に限定されないが、具体的には、アニオン界面活性剤、カチオン界面活性剤、非イオン界面活性剤が挙げられる。これら界面活性剤は、ストリッピング帯の水に対して一般に0.1～3000ppm添加することができる。

[0065] 前記界面活性剤に加えて、Li, Na, Mg, Ca, Al, Zn等の金属の水溶性塩をクラムの分散助剤として用いることもできる。

[0066] ブロック共重合体の重合工程及び前記スチームストリッピングを経て得られる、水中に分散したクラム状のブロック共重合体の濃度は、一般に0.1～20質量%（ストリッピング帯の水に対する割合）である。この範囲であれば運転上の支障をきたすことなく、良好な粒径を有するクラムを得ることができる。このブロック共重合体のクラムを脱水により含水率を1～30質量%に調整し、その後、含水率が1質量%以下になるまで乾燥を行うことが好ましい。

[0067] 前記クラムの脱水工程においては、ロール、バンバリー式脱水機、スクリュウ押出機式絞り脱水機等の圧縮水絞機での脱水、あるいはコンベヤー、箱型の熱風乾燥機で脱水と乾燥を同時に行ってもよい。

[0068] 本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物を構成するブロック共重合体の成分（b）の3分岐ブロック共重合体が10質量%以上、50質量%以下の範囲であれば、4分岐以上の多官能ブロック共重合体を含有する場合と比べて、ブロック共重合体同士が融着せず、又はコンベヤー面に接着若しくは箱型乾燥機の壁面に付着せず、乾燥がスムーズにできる傾向にある。

[0069] [粘接着剤組成物]

（構成）

本実施形態の粘接着剤組成物は、上述した粘接着剤用ブロック共重合体と、後述する粘着付与剤と、後述する軟化剤と、必要に応じて後述するその他の成分とを含有するものである。

[0070] なお、用途に応じて、ブロック共重合体組成物中の成分（a）、（b）の数平均分子量を選択し、粘着付与剤、軟化剤等の、各々の配合量を調整する

ことが好ましい。

[0071] 本実施形態の粘接着剤組成物は、上述した本実施形態の粘接着剤用ブロック共重合体組成物：100質量部と、粘着付与剤：100～400質量部と、軟化剤：50～150質量部と、を含有するものである。これにより、本実施形態の粘接着剤組成物において、優れた粘着性、粘着力、溶解性、塗工性、吐出安定性、表面肌が得られる。粘着付与剤の量は、好ましくは120～380質量部であり、より好ましくは150～350質量部である。また、軟化剤の量は、好ましくは70～130質量部であり、より好ましくは80～120質量部である。

[0072] (粘着付与剤)

本実施形態の粘接着剤組成物を構成する粘着付与剤は、得られる粘接着剤組成物の用途、要求性能によって、多種多様に選択することができる。

[0073] 粘着付与剤としては、特に限定されないが、具体的には、例えば、天然ロジン、変性ロジン、水添ロジン、天然ロジンのグリセロールエステル、変性ロジンのグリセロールエステル、天然ロジンのペンタエリスリトールエステル、変性ロジンのペンタエリスリトールエステル、水添ロジンのペンタエリスリトールエステル、天然テルペンのコポリマー、天然テルペンの3次元ポリマー、水添テルペンのコポリマーの水素化誘導体、ポリテルペン樹脂、フェノール系変性テルペン樹脂の水素化誘導体、脂肪族石油炭化水素樹脂、脂肪族石油炭化水素樹脂の水素化誘導体、芳香族石油炭化水素樹脂、芳香族石油炭化水素樹脂の水素化誘導体、環状脂肪族石油炭化水素樹脂、環状脂肪族石油炭化水素樹脂の水素化誘導体を例示することができる。これらの粘着付与剤は、単独で、又は組み合わせて使用することができる。

[0074] 粘着付与剤は、色調が無色～淡黄色であって、臭気を実質的に無く熱安定性が良好なものであれば、液状タイプの粘着付与樹脂も使用できる。

[0075] 水素化誘導体以外の粘着付与剤としては、特に限定されないが、例えば、脂肪族樹脂、脂環式樹脂、ポリテルペン、天然及び変性ロジンエステル並びにそれらの混合物が好ましい。具体例としては、サートマー製のWingtack Ex

tra（商品名）、イーストマンケミカル社製のPiccotac（商品名）、エクソンモービルケミカル社製のEscorez（商品名）、アリゾナケミカル社製のSylvagum（商品名）、Sylvalite（商品名）、及びアッシュランド製のPiccolyte（商品名）等が挙げられる。

[0076] 着色のし難さや臭気の低さの点で、粘着付与樹脂は、水素化誘導体が好ましい。このなかでも特に水素添加ジシクロペンタジエン系樹脂が好ましい。このような水素化誘導体の具体例としては、特に限定されないが、荒川化学社製のアルコンP100（商品名）、アルコンM115（商品名）、ヤスハラケミカル社製のクリアロンP135（商品名）、エクソン社製のECR5400（商品名）等が挙げられる。

[0077] 粘接着剤組成物として、高い接着性、接着強度の耐経時変化あるいはクリープ性能（値が小さい方が良好）等が必要な場合には、粘接着剤用ブロック共重合体組成物中に、ブロック共重合体の非ガラス相のブロック（通常は中間ブロック）と親和性のある粘着付与樹脂を20～75質量%、且つブロックポリマーのガラス相のブロック（通常は外側ブロック）に親和性のある粘着付与剤を3～30質量%含有するのがより好ましい。

[0078] ガラス相のブロックに親和性のある粘着付与として、末端ブロックの粘着付与樹脂が好ましい。該粘着付与樹脂の例としては、主として芳香族有する樹脂で、ビニルトルエン、スチレン、 α -メチルスチレン、クマロン又はインデンを含有するホモポリマーあるいはコポリマーが挙げられる。さらに、これらの中で、 α -メチルスチレンを有するKristalexやPlastolyn（イーストマンケミカル社製、商品名）が好ましい。末端ブロックの粘着付与剤の粘接着剤用ブロック共重合体組成物中の使用量は、3～30質量%の範囲が好ましく、5～20質量%の範囲がより好ましく、6～12質量%の範囲がさらに好ましい。

[0079] 粘接着剤用ブロック共重合体組成物として、高い初期接着力、高い濡れ性、粘着組成物の低い溶融粘度あるいは高い塗工性、吐出安定性等が必要な場合には、組成物に用いる粘着付与剤はアロマ含有率が3～12質量%である

石油樹脂が好ましい。アロマ含有率が4～10質量%がより好ましく、特に、水添の石油樹脂が好ましい。

[0080] (軟化剤)

本実施形態の粘接着剤組成物を構成する軟化剤としては、特に限定されないが、例えば、オイル、可塑剤、液体粘着付与剤（30℃よりも低い環球式軟化点を有する）、合成液体オリゴマー、及びそれらの混合物が挙げられる。

[0081] 軟化剤は、特に限定されず、公知のパラフィン系やナフテン系のプロセスオイル及びこれらの混合オイル等を使用することができる。

[0082] 市販品の具体例として、特に限定されないが、例えば、出光興産社製のダイアナフレッシュS32（商品名）、ダイアナプロセスオイルPW-90（商品名）、プロセスオイルNS100（商品名）、Kukdong Oil & Chem社製のWhite Oil Broom 350（商品名）、DNオイルK P-68（商品名）、BPケミカルズ社製のEnerper M1930（商品名）、Crompton社製のKaydol（商品名）、エッソ社製のPrimol 352（商品名）、PetroChina Company社製のKN4010（商品名）等が挙げられる。

[0083] (その他の成分)

本実施形態の粘接着剤組成物には、必要に応じて、酸化防止剤、本実施形態の粘接着剤組成物を構成するブロック共重合体以外の合成ゴム若しくはポリマー、ワックス、光安定剤等の安定剤、及びその他の添加剤を添加することができる。

[0084] 酸化防止剤としては、特に限定されないが、具体的には、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、n-オクタデシル-3-(4'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)プロピオネート、2, 2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2, 2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)、2, 4-ビス[(オクチルチオ)メチル]-0-クレゾール、2-tert-ブチル-6-(3-tert-

ブチルー 2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート、2, 4-ジ-tert-アミルー 6-[1-(3, 5-ジ-tert-アミルー 2-ヒドロキシフェニル)エチル]フェニルアクリレート、2-[1-(2-ヒドロキシ-3, 5-ジ-tert-ペンチルフェニル)]アクリレート等のヒンダードフェノール系酸化防止剤；ジラウリルチオジプロピオネート、ラウリルステアリルチオジプロピオネートペンタエリスリトールテトラキス（ β -ラウリルチオプロピオネート）等のイオウ系酸化防止剤；トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、トリス（2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト等のリン系酸化防止剤等が挙げられる。

[0085] 酸化防止剤の市販品の具体例としては、住友化学工業（株）製のスミライザーGM（商品名）、スミライザーTPD（商品名）及びスミライザーTPS（商品名）、チバスペシャリティケミカルズ社製のイルガノックス1010（商品名）、イルガノックスHP2225FF（商品名）、イルガフォス168（商品名）及びイルガノックス1520（商品名）、城北化学社製のJF77（商品名）を例示することができる。これら安定化剤は、単独で又は組み合わせて使用することができる。

[0086] 酸化防止剤の添加量は任意であるが、好ましくは粘接着剤組成物100質量部に対して5質量部以下である。

[0087] 本実施形態において用いるブロック共重合体以外の合成ゴム又はポリマーとしては、特に限定されないが、例えば、アタクチックポリプロピレン、エチレン-エチルアクリレート共重合体等のポリオレフィン系樹脂又は低分子量のビニル芳香族系熱可塑性樹脂、天然ゴム、ポリイソプレングム、ポリブタジエングム、スチレン-ブタジエングム、エチレン-プロピレングム、クロロプレングム、アクリルゴム、イソプレナーイソブチレングム、ポリペンテナマーゴム、及び本実施形態において用いるブロック共重合体以外のスチレン-ブタジエン系ブロック共重合体、スチレン-イソプレン系ブロック共重合体、水素化スチレン-ブタジエン系ブロック共重合体、水素化スチレン-イソプレン系ブロック共重合体などの合成ゴムを添加してもよい。

- [0088] 粘接着剤組成物として、組成物を剥がしたときの糊残りの低減、接着強度の経時変化抑制あるいはクリープ性（値が小さい方が良好）等が必要な場合には、水素添加したスチレン系ブロック共重合体を併用することが好ましい。該スチレン系ブロック共重合体のスチレン含有量としては、15質量%～45質量%の範囲が好ましい。該スチレン系ブロック共重合体中の共役ジエン中の不飽和基の水素添加率は、30モル%以上が好ましく、50モル%以上がより好ましく、70モル%以上がさらに好ましく、85モル%以上が最も好ましい。
- [0089] 粘接着剤組成物として、高い接着性あるいはゲル化の抑制等が必要な場合には、本実施形態において用いるブロック共重合体以外のイソプレンを有するブロック共重合体を併用してもよい。より好ましい共重合体としては、少なくともポリスチレンブロックとポリイソプレンブロックを有する共重合体、例えば、 $PS-P I-PS$ （ PS ：ポリスチレンブロック、 $P I$ ：ポリイソプレンブロック）、また、少なくともポリスチレンブロック、ポリイソプレンブロック及びポリブタジエンブロックを有する共重合体、例えば、 $(PS-P I-P B)_n Y$ （ $P B$ ：ポリブタジエンブロック、 Y ：多官能性カップリング剤の残基）、あるいは少なくともポリスチレンブロック、ポリイソプレン／ブタジエン共重合体ブロックを有する共重合体、例えば、 $PS-(P I/B)-PS$ （ $P I/B$ ：イソプレン／ブタジエン共重合体ブロック）が挙げられる。これらはラジアル構造がより好ましい。
- [0090] 粘接着剤組成物として、高い低温塗工性、クリープ（値が小さい方が良好）、高強度あるいは高伸度等が必要な場合には、アイオノマーを5質量%以下の範囲で使用してもよい。アイオノマーとしては、金属イオンにより中和されるかまたは部分的に中和されるカルボキシレート、スルホネートまたはホスホネートを含むポリマーかコポリマーが好ましい。
- [0091] 粘接着剤組成物として、高温貯蔵安定性、高伸度あるいは粘接着剤用ブロック共重合体組成物中の粘着付与樹脂量を低減する（組成物中の55質量%以下、さらに45質量%以下）等の場合には、 α -オレフィンを用いたコポ

リマー、あるいはプロピレンホモポリマーを含有することが好ましい。これらのポリマーの融点（条件：DSC測定、5℃/分）は、110℃以下が好ましく、100℃以下がより好ましく、60℃～90℃の範囲がさらに好ましい。これらのポリマーは樹脂であってもエラストマーであってもよい。これらのポリマーの分子量分布は、1～4の範囲が好ましく、1～3の範囲がより好ましい。加工性の点で、2種以上の該ポリマーを併用することがより好ましい。2種のポリマーの分子量としては、少なくとも、3～6万と、6万～9万のポリマーを併用することが好ましく、少なくとも、3.5万～5.5万と、6～8万のポリマーを併用することがより好ましい。また、これらを用いた組成物中の液状成分（オイル等）は、20質量%以上が好ましく、25質量%以上がより好ましい。

[0092] 粘接着剤組成物として、伸度等が必要な場合には、オレフィン系エラストマーを併用するのが好ましい。オレフィン系エラストマー、少なくとも－10℃以下にT_gを有するものが好ましい。また、クリープ性能（値が小さい方が良好）の点で、ブロックを有するオレフィン系エラストマーがより好ましい。

[0093] ワックスとしては、特に限定されないが、例えば、パラフィンワックス、マイクロクリスタンワックス、低分子量ポリエチレンワックス等を添加することができる。

[0094] 粘接着剤組成物として、低い溶融粘度、特に140℃以下での低い溶融粘度が必要な場合には、50℃～110℃の融点を有する、パラフィンワックス、微晶質ワックス、ならびにフィッシャー－トロプシュワックスから選択される少なくとも一種のワックスを2～10質量%含有することが好ましい。含有量は5～10質量%の範囲がより好ましい。また、前記ワックスの融点は、65℃以上が好ましい。70℃以上がより好ましく、75℃以上がさらに好ましい。また、このときに併用する粘着付与剤の軟化点は、70℃以上が好ましく、80℃以上がより好ましい。このとき、得られる組成物のG'（測定条件：25℃、10rad/s）が1Mpa以下、さらに、7℃以下の結

晶化温度が好ましい。

[0095] 光安定剤としては、特に限定されないが、具体的には、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤や、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン系紫外線吸収剤、あるいはヒンダードアミン系光安定剤等を挙げることができる。

[0096] 本実施形態の粘接着剤組成物には、その他の添加剤として、微粒子充填剤を更に含むことができる。微粒子充填剤は、一般に使用されているものであればよく、本実施形態が目的とするホットメルト接着剤を得ることができる限り、特に限定されることはない。「微粒子充填剤」として、例えば雲母、炭酸カルシウム、カオリン、タルク、酸化チタン、ケイソウ土、尿素系樹脂、スチレンビーズ、焼成クレイ、澱粉等を例示できる。これらの形状は、好ましくは球状であり、その寸法（球状の場合は直径）については特に限定されるものではない。

[0097] [粘接着剤組成物の特性]

本実施形態の粘接着剤組成物から得られる粘着テープの性能は、ルーパック(N/15mm)が3.5以上であることが好ましく、4.0以上であることがより好ましく、4.5以上であることがさらに好ましい。また、粘着力(N/10mm)が8以上であることが好ましく、8.7以上であることがより好ましく、9.5以上であることがさらに好ましい。

[0098] 本実施形態の粘接着剤組成物から得られる粘着テープの性能は、後述する実施例において示される条件により作製される粘着テープを用い、実施例中に示された測定条件に従って測定することができる。

[0099] [粘接着剤組成物の製造方法]

本実施形態の粘接着剤組成物は、公知の方法により、上述したブロック共重合体組成物と、粘着付与剤と、軟化剤と、必要に応じてその他の添加剤と

を混合することにより製造できる。混合方法としては、特に限定されないが、具体的には、粘接着剤用ブロック共重合体組成物、粘着付与剤、軟化剤とを、混合機又はニーダー等で、加熱しながら均一混合する方法が挙げられる。

[0100] 混合する際の温度は130℃～210℃が好ましく、140℃～200℃がより好ましく、150℃～190℃がさらに好ましい。130℃以上とすることにより、粘接着剤用ブロック共重合体組成物を十分に溶融し、分散が良好となる傾向にある。また、210℃以下とすることにより、架橋剤や粘着付与剤の低分子量成分の蒸発、粘接着特性の劣化の防止ができる傾向にある。

[0101] また、混合時間は、5～90分が好ましく、10分～80分がより好ましく、20分～70分がさらに好ましい。5分以上とすることにより、各成分を均一に分散できる傾向にある。また、90分以下とすることにより、架橋剤や粘着付与剤の低分子量成分の蒸発、粘接着特性の劣化の防止、ブロック共重合体の劣化の防止ができる傾向にある。

[0102] [粘接着剤組成物の塗布方法]

粘接着剤を塗布する方法は、目的とする製品を得ることができる限り、粘接着剤組成物を溶媒に溶かし、溶液塗工する方法や粘接着剤組成物を溶融させて塗工するホットメルト塗工法等で塗工する方法があるが特に制限されるものではない。また、環境汚染や塗工の容易性からホットメルト塗工法が好ましい。ホットメルト塗工法には、接触塗布、非接触塗布に大別される。「接触塗布」とは、ホットメルト接着剤を塗布する際、噴出機を部材やフィルムに接触させる塗布方法をいう。また、「非接触塗布」とは、ホットメルト接着剤を塗布する際、噴出機を部材やフィルムに接触させない塗布方法をいう。接触塗布方法としては、特に限定されないが、例えば、スロットコーター塗工及びロールコーター塗工等を例示でき、非接触塗布方法として、例えば、螺旋状に塗布できるスパイラル塗工、波状に塗布できるオメガ塗工やコントロールシーム塗工、面状に塗布できるスロットスプレー塗工やカーテンス

プレー塗工、点状に塗工できるドット塗工などを例示できる。

[0103] また、本実施形態の粘接着剤組成物は、スパイラル塗工に適している。スパイラル塗工とは、間欠または連続塗工で接着剤をエアでらせん状に非接触塗布する方法である。ホットメルト接着剤を、スプレー塗工にて広い幅で塗工できることは、使い捨て製品を製造するには極めて有用である。広い幅で塗工できるホットメルト接着剤は、ホットエアーの圧力を調整することにより、塗工幅を狭く調節することが可能である。ホットメルト接着剤が広い幅で塗工困難であることにより、十分な接着面積を得るために数多くのスプレーノズルが必要になり、尿取りライナーのような比較的小さな使い捨て製品、複雑な形状の使い捨て製品を製造するにも不適である。従って、本実施形態の粘接着剤組成物は、広い幅でスパイラル塗工が可能であるため、使い捨て製品用として好適である。

[0104] 本実施形態の粘接着剤組成物は、150℃以下の塗工適性が良好なので、使い捨て製品の製造に有用である。ホットメルト接着剤を高温で塗工すると、使い捨て製品の基材であるポリオレフィン（好ましくは、ポリエチレン）フィルムが溶融したり、熱収縮したりするので、使い捨て製品の外観が大きく損なわれる。150℃以下でホットメルト接着剤を塗工すると、使い捨て製品の基材であるポリオレフィン（好ましくは、ポリエチレン）フィルムや不織布の外観が殆ど変化せず、製品の外観が損なわれない。

[0105] 本実施形態の粘接着剤組成物は、高速塗工適性に優れているので、短時間で使い捨て製品を製造するために好適である。高速で搬送される基材にホットメルト接着剤を塗工する場合、接触式の塗工方法では、摩擦による基材の破断が発生することがある。本実施形態の粘接着剤組成物は、非接触塗工の一種であるスパイラル塗工に適しているので、高速塗工向きであり、使い捨て製品の生産効率を向上させることが可能である。さらに、高速塗工に適した本実施形態のホットメルト接着剤は、塗工パターンが乱れることもない。

[0106] 本実施形態の粘接着剤組成物は、熱安定性が良好であり、100～200℃の高温タンク内で均一に溶融され、相分離することがない。熱安定性に乏

しいホットメルト接着剤は、高温タンク内で容易に成分が相分離する。相分離は、タンクフィルター、輸送配管詰まりの原因ともなる。

[0107] 〔用途〕

本実施形態の粘接着剤組成物は、良好な溶解性及び塗工性、吐出安定性、表面肌を有し、粘着性及び粘着力に優れ、かつこれらの粘接着特性バランスも良好である。このような特徴を生かして、各種粘着テープ・ラベル類、感圧性薄板、感圧性シート、表面保護シート・フィルム、各種軽量プラスチック成型品固定用裏糊、カーペット固定用裏糊、タイル固定用裏糊、接着剤等に利用でき、特に粘着性テープ用、粘着性シート・フィルム用、粘着性ラベル用、表面保護シート・フィルム用、衛材用の粘接着剤用として有用である。

実施例

[0108] 以下、具体的な実施例と比較例を挙げて本発明について詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。なお、以下の実施例及び比較例において、重合体の特性や物性の測定は、下記の方法により行った。

[0109] 〔（１）：粘接着剤用ブロック共重合体組成物の特性〕

＜（１－１）粘接着剤用ブロック共重合体組成物の仕上げ性＞

下記重合溶液にスチームストリッピングを行って溶媒を除去した後、含水クラムを１軸スクリュウ押出機型水絞り機に送り、脱水したクラム（ブロック共重合体）を８５℃での箱型の熱風乾燥機で１時間乾燥した後のブロック共重合体と、熱風乾燥機の箱の内壁との接着状態を観察した。

評価基準

○：ブロック共重合体が箱の内壁と全く接着していない状態

△：若干の接着が見られるものの、手で簡単に剥がれる状態

×：ブロック共重合体が箱の内壁と強固に接着し、かなり強い力でない剥がれない状態

[0110] ＜（１－２）ビニル芳香族単量体単位（スチレン）の含有量＞

一定量のブロック共重合体をクロロホルムに溶解し、紫外分光光度計（島津製作所製、UV-2450）にて測定し、ビニル芳香族化合物成分（スチレン）に起因する吸収波長（262 nm）のピーク強度から検量線を用いてビニル芳香族単量体単位（スチレン）の含有量を算出した。

[0111] <（1-3）数平均分子量>

成分（a）、成分（b）の数平均分子量の測定は、ゲルパーミエーション・クロマトグラフィー（GPC：装置は、ウォーターズ製）で測定し、溶媒にはテトラヒドロフランを用い、測定条件は、温度35℃で行った。数平均分子量は、クロマトグラム上のピークの分子量を、市販の標準ポリスチレンの測定から求めた検量線（標準ポリスチレンのピーク分子量を使用して作成）を使用して求めた。

[0112] <（1-4）数平均分子量比>

数平均分子量比（成分（b）／成分（a））は、上記で求めた成分（a）、成分（b）の数平均分子量から算出した。

[0113] <（1-5）成分（a）（ジブロック共重合体）の含有量>

上記ゲルパーミエーション・クロマトグラフィー（GPC：装置は、ウォーターズ製）で測定したクロマトグラムの総ピーク面積に対する分子量が低いピークの面積の割合を成分（a）（ジブロック共重合体）の含有量とした。なお、成分（b）の含有量は、分子量が高いピークの面積の割合から求めることができる。

[0114] <（1-6）15質量％トルエン溶液粘度>

15質量％トルエン溶液粘度は、キャノンフェンスケ粘度管を用いて、25℃の温度に管理された恒温槽中で測定した。

[0115] [(2)：粘接着剤組成物の物性の測定]

<（2-1）粘接着剤組成物の溶解性>

混合装置として用いた加圧式ニーダー（株式会社森山製作所製 DO. 3-3型ニーダー）のトルク変化を読み取り、変化率が1%以内になったところを溶解した時間とした。

評価基準

○：溶解時間が30分以内

△：溶解時間が30より長く60分より短い

×：溶解時間が60分以上

[0116] < (2-2) 粘接着剤組成物の溶融粘度 >

粘接着剤組成物の溶融粘度は、温度140℃でブルックフィールド型粘度計（ブルックフィールド社製 DV-III）により測定した。

[0117] < (2-3) 粘接着剤組成物の軟化点 >

粘接着剤組成物の軟化点は、JIS-K2207に準じ、規定の環に試料を充填し、水中で水平に支え、試料の中央に3.5gの球を置き、液温を5℃/minの速さで上昇させたときに、球の重さで試料が環台の底板に触れたときの温度として測定した。

[0118] < (2-4) 塗工性 >

溶融させた粘接着剤組成物を160℃に加熱したホットプレート上に垂らし、160℃に加熱したアプリケーションで塗工した後の粘接着剤塗工面を目視観察した。

評価基準

○：ムラが10%未満の状態

△：ムラが10～40%未満

×：ムラが40%以上

[0119] < (2-5) 吐出安定性 >

キャピラリーレオメーター（株式会社東洋精機製作所製、商品名：キャピログラフ1D、型式：PM-C）を用いて、温度を120℃、吐出速度を100mm/minの条件で粘接着剤組成物を吐出させ、吐出開始後1分間1分間の粘度変動を測定し、粘度の変動範囲が5mPa・s以下であれば実用上優れた性能、10mPa・s以下であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0120] < (2-6) 表面肌 >

吐出安定性の評価で吐出されたストランドの表面状態を目視観察し、表面の肌について下記のように評価した。

◎：全く荒れていない

○：ごく僅か荒れている

△：少し荒れている

×：かなり荒れている

◎であれば実用上優れた性能、○であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0121] (粘着テープの作製)

溶融させた粘接着剤組成物を室温まで冷却し、これをトルエンに溶かし、アプリケーションでポリエステルフィルムにコーティングし、その後、室温で30分間、70℃のオーブンで7分間、トルエンを完全に蒸発させ、厚さ50μmの粘着テープを作製した。

[0122] < (2-7) 粘接着剤組成物の粘着性 (ループタック) >

250mm長×15mm幅のループ状の粘着テープを用い、PE (ポリエチレン) 板への接触面積：15mm×50mm、接着時間3sec、接着及び引き剥がし速度：500mm/minで測定した。粘着性の測定値 (N/15mm) が、4.0以上であれば実用上優れた性能、3.5以上であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0123] < (2-8) 粘接着剤組成物の粘着力 >

25mm幅の粘着テープをポリエチレン板に貼り付け、引き剥がし速度300mm/minで180°剥離力を測定し、粘着力とした。粘着力の測定値 (N/10mm) が、9.5以上であれば実用上優れた性能、8.0以上であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0124] < (2-9) 粘接着剤組成物の保持力 >

保持力は、ステンレス板及びポリエチレン板に25mm×25mmの面積が接するように前記粘着テープを貼り付け、40℃において1kgの荷重を与えて粘着テープがずれ落ちるまでの時間を測定した。保持力の測定値 (分

）が、１８０以上であれば実用上優れた性能、１５０以上であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0125] ＜（２－１０）粘接着剤組成物の臭気＞

粘接着剤組成物を作製するにあたり温度を１８０℃、攪拌羽根の回転数を３，０００ｒｐｍの条件で熔融混練を行う時の臭気の程度を下記のように評価した。

◎：全く臭わない

○：殆ど臭わない

△：少し臭う

×：かなり臭う

◎であれば実用上優れた性能、○であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0126] ＜（２－１１）混練後の粘接着剤組成物の色＞

温度を１８０℃、攪拌羽根の回転数を３，０００ｒｐｍ、攪拌時間を９０分で熔融混練して作製した粘接着剤組成物の色を観察した。粘接着剤組成物の色が無色であれば実用上優れた性能、淡黄色であれば実用上十分な性能であると判断した。

[0127] 〔（３）：ブロック共重合体の調製〕

＜ポリマー組成物１：３官能カップリングスチレン－ブタジエンブロック共重合体組成物＞

攪拌機及びジャケット付きの内容量１０Ｌのステンレス製オートクレーブを、洗浄、乾燥、窒素置換し、シクロヘキサン６，３００ｇ、予め精製したスチレン３９６ｇを仕込み、ジャケットに温水を通水して内容物を約４０℃に設定した。次に、*n*－ブチルリチウムシクロヘキサン溶液（純分で２．６ｇ）を添加し、スチレンの重合を開始した。

[0128] スチレンの重合により、最高温度（５３℃）に達してから６分後、ブタジエン（１，３－ブタジエン）８０４ｇを添加し、重合を継続し、ブタジエンがほぼ完全に重合して最高温度（８９℃）に達してから３０秒後に、カップ

- リング剤としてトリメトキシシランを添加し、カップリングさせた。カップリング剤添加より10分後に、メタノール0.77gを加えて失活させた。
- [0129] 得られたブロック共重合体溶液に、オクタデシル-3-(3,5-ジブチル-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネートを、上記ブロック共重合体100質量部に対して0.3質量部添加して充分混合した。上記の重合溶液をスチームストリッピングするにあたり、クラム化剤として、 α -(*p*-ノニルフェニル)- ω -ヒドロキシポリ(オキシエチレン)のジハイドロジェンリン酸エステルとモノハイドロジェンリン酸エステルとの混合物をストリッピング帯の水に対して30ppm用い、90~98℃の温度で溶媒を除去した。溶媒除去槽内のスラリー中の重合体クラムの濃度は約5質量%であった。
- [0130] 次に、上記で得られたクラム状ブロック共重合体の水分散スラリーを、回転式スクリーンに送り、含水率45質量%の含水クラムを得た。この含水クラムを1軸スクリー押出機型水絞り機に送り、脱水した重合体を得た。このクラムを85℃での箱型の熱風乾燥機で1時間乾燥して、粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物1)を得た。
- [0131] ポリマー組成物1のスチレンの含有量はポリマー組成物1全体に対して38.1質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は24.6mPa·sであった。
- [0132] ポリマー組成物1は、成分(b):((A-B)₃X)と、成分(a):(A-B)の混合物であり、成分(a)の数平均分子量は48,000、成分(b)の数平均分子量は159,000であった。また、成分(a)に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は67.1質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は32.9質量%であった。
- [0133] <ポリマー組成物2:2官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

精製したスチレンの仕込み量を444gとし、*n*-ブチルリチウムシクロ

ヘキサン溶液の添加量を純分で2.5 gとし、ブタジエン（1,3-ブタジエン）の添加量を756 gとし、カップリング剤として安息香酸エチルを添加し、失活のためのエタノール量を0.62 gに変更したこと以外は、ポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って、粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物2）を得た。

[0134] ポリマー組成物2のスチレンの含有量はポリマー組成物2全体に対して36.6質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は31.5 mPa・sであった。

[0135] ポリマー組成物2は、 $((A-B)_2X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が51,000、 $((A-B)_2X)$ の数平均分子量が97,000であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は52.9質量%であり、 $((A-B)_2X)$ のブロック共重合体の含有率は47.1質量%であった。

[0136] <ポリマー組成物3：4官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

精製したスチレンの仕込み量を380 gとし、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で3.52 gとし、ブタジエン（1,3-ブタジエン）の添加量を820 gとし、カップリング剤として四塩化ケイ素を添加し、失活はエタノール水中に抜き出して行ったこと以外は、ポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って、粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物3）を得た。

[0137] ポリマー組成物3のスチレンの含有量はポリマー組成物3全体に対して35.6質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は26.5 mPa・sであった。

[0138] ポリマー組成物3は、 $((A-B)_4X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が34,000、 $((A-B)_4X)$ の数平均分子

量が139,000であった。また、(A-B)のブロック共重合体の含有率は63.5質量%であり、((A-B)₄X)のブロック共重合体の含有率は36.5質量%であった。

[0139] <ポリマー組成物4：3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

精製したスチレンの仕込み量を300g、n-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.4g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を900g、失活のためのエタノール量を0.71gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って、粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物4)を得た。

[0140] ポリマー組成物4のスチレンの含有量はポリマー組成物4全体に対して22.4質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は33.2mPa・sであった。

[0141] ポリマー組成物4は、成分(b)：((A-B)₃X)と、成分(a)：(A-B)の混合物であり、成分(a)の数平均分子量が54,000、成分(b)の数平均分子量が178,000であった。また、成分(a)に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は56.3質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は43.7質量%であった。

[0142] <ポリマー組成物5：3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を360g、n-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.5g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を840g、カップリング剤としてテトラエトキシシラン、失活のためのエタノール量を0.74gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って、粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物5)を得た。

[0143] ポリマー組成物5のスチレンの含有量はポリマー組成物5全体に対して29.7質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は32.5 mPa・sであった。

[0144] ポリマー組成物5は、成分(b) : $((A-B)_3X)$ と、成分(a) : (A-B)の混合物であり、成分(a)の数平均分子量が50,000、成分(b)の数平均分子量が165,000であった。また、成分(a)に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は59.2質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は40.8質量%であった。

[0145] <ポリマー組成物6 : 3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を540g、n-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.8g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を660g、失活のためのエタノール量を0.83gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って、粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物6)を得た。

[0146] ポリマー組成物6のスチレンの含有量はポリマー組成物6全体に対して45.3質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は22.1 mPa・sであった。

[0147] ポリマー組成物6は、成分(b) : $((A-B)_3X)$ と、成分(a) : (A-B)の混合物であり、成分(a)の数平均分子量が45,000、成分(b)の数平均分子量が148,000であった。また、成分(a)に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は70.6質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は29.4質量%であった。

[0148] <ポリマー組成物7 : 3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を660g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で3.3g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を540g、失活のためのエタノール量を1.00gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って、粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー7組成物)を得た。

[0149] ポリマー組成物7のスチレンの含有量はポリマー組成物7全体に対して54.8質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は20.7 mPa・sであった。

[0150] ポリマー組成物7は、成分(b) : $((A-B)_3X)$ と、成分(a) : (A-B)の混合物であり、成分(a)の数平均分子量が36,000、成分(b)の数平均分子量が120,000であった。また、成分(a)に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は75.0質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は25.0質量%であった。

[0151] <ポリマー組成物8 : 3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を414g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.5g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を786gにし、ブタジエンの重合を開始してから2分後に一部のブロック共重合体を失活するためにエタノールを0.25g添加し、重合を継続し、失活のためのエタノール量を0.62gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物8)を得た。

[0152] ポリマー組成物8のスチレンの含有量はポリマー組成物8全体に対して34.9質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は29.7 mPa・sであった。

[0153] ポリマー組成物 8 は、成分 (b) : $((A-B)_3X)$ と、成分 (a) : $(A-B)$ 及び途中失活成分 : $(A-B')$ の混合物であり、成分 (a) の数平均分子量が 58,000、成分 (b) の数平均分子量が 185,000 であった。また、成分 (a) に相当する、スチレンーブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は 64.5 質量%、途中失活したスチレンーブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は 8.5 質量%であり、成分 (b) に相当する 3 官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体の含有率は 27.0 質量%であった。

[0154] <ポリマー組成物 9 : 3 官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を 576 g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で 5.0 g、ブタジエン (1,3-ブタジエン) の添加量を 624 g、失活のためのエタノール量を 1.50 g に変更したこと以外はポリマー組成物 1 と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物 (ポリマー組成物 9) を得た。

[0155] ポリマー組成物 9 のスチレンの含有量はポリマー組成物 9 全体に対して 47.8 質量%であり、15 質量%トルエン溶液における粘度は 8.8 mPa・s であった。

[0156] ポリマー組成物 9 は、成分 (b) : $((A-B)_3X)$ と、成分 (a) : $(A-B)$ の混合物であり、成分 (a) の数平均分子量が 20,000、成分 (b) の数平均分子量が 67,000 であった。また、成分 (a) に相当するスチレンーブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は 51.8 質量%であり、成分 (b) に相当する 3 官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体の含有率は 48.2 質量%であった。

[0157] <ポリマー組成物 10 : 3 官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を 540 g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液

の添加量を純分で3.9 g、ブタジエン（1,3-ブタジエン）の添加量を660 g、失活のためのエタノール量を1.17 gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物10）を得た。

[0158] ポリマー組成物10のスチレンの含有量はポリマー組成物10全体に対して45.1質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は14.5 mPa・sであった。

[0159] ポリマー組成物10は、成分（b）： $((A-B)_3X)$ と、成分（a）： $(A-B)$ の混合物であり、成分（a）の数平均分子量が30,000、成分（b）の数平均分子量が99,000であった。また、成分（a）に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は58.2質量%であり、成分（b）に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は41.8質量%であった。

[0160] <ポリマー組成物11：3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を420 g、n-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.3 g、ブタジエン（1,3-ブタジエン）の添加量を780 g、失活のためのエタノール量を0.68 gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物11）を得た。

[0161] ポリマー組成物11のスチレンの含有量はポリマー組成物11全体に対して35.1質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は33.5 mPa・sであった。

[0162] ポリマー組成物11は、成分（b）： $((A-B)_3X)$ と、成分（a）： $(A-B)$ の混合物であり、成分（a）の数平均分子量が59,000、成分（b）の数平均分子量が195,000であった。また、成分（a）に相

当するスチレンーブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は67.5質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体の含有率は32.5質量%であった。

[0163] <ポリマー組成物12:3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を324g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.2g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を876g、失活のためのエタノール量を0.66gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物12)を得た。

[0164] ポリマー組成物12のスチレンの含有量はポリマー組成物12全体に対して26.9質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は44.7 mPa・sであった。

[0165] ポリマー組成物12は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が69,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が228,600であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は76.0質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は24.0質量%であった。

[0166] <ポリマー組成物13:3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を360g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で3.7g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を840g、失活のためのエタノール量を1.11gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物13)を得た。

[0167] ポリマー組成物13のスチレンの含有量はポリマー組成物13全体に対し

て30.2質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は20.1 mPa・sであった。

[0168] ポリマー組成物13は、成分(b) : $((A-B)_3X)$ と、成分(a) : (A-B) の混合物であり、成分(a)の数平均分子量が32,000、成分(b)の数平均分子量が106,000であった。また、成分(a)に相当するスチレンーブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は45.6質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体の含有率は54.4質量%であった。

[0169] <ポリマー組成物14 : 3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を408g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で4.4g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を792g、カップリング剤としてテトラエトキシシラン、失活のためのエタノール量を1.32gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物14)を得た。

[0170] ポリマー組成物14のスチレンの含有量はポリマー組成物14全体に対して34.0質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は24.9 mPa・sであった。

[0171] ポリマー組成物14は、成分(b) : $((A-B)_3X)$ と、成分(a) : (A-B) の混合物であり、成分(a)の数平均分子量が45,000、成分(b)の数平均分子量が146,000であった。また、成分(a)に相当するスチレンーブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は55.0質量%であり、成分(b)に相当する3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体の含有率は45.0質量%であった。

[0172] <ポリマー組成物15 : 3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を480g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液

の添加量を純分で2.4 g、ブタジエン（1, 3-ブタジエン）の添加量を720 g、失活のためのエタノール量を0.72 gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物15）を得た。

[0173] ポリマー組成物15のスチレンの含有量はポリマー組成物15全体に対して40.2質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は30.1 mPa・sであった。

[0174] ポリマー組成物15は、成分（b）： $((A-B)_3X)$ と、成分（a）： $(A-B)$ の混合物で成分（a）の数平均分子量が58,000、成分（b）の数平均分子量が192,000であった。また、成分（a）に相当するスチレン-ブタジエンのジブロック構造のブロック共重合体の含有率は75.5質量%であり、成分（b）に相当する3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体の含有率は24.5質量%であった。

[0175] <ポリマー組成物16：3官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を540 g、n-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.20 g、ブタジエン（1, 3-ブタジエン）の添加量を660 g、失活のためのエタノール量を0.66 gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物16）を得た。

[0176] ポリマー組成物16のスチレンの含有量はポリマー組成物17全体に対して45.1質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は37.5 mPa・sであった。

[0177] ポリマー組成物16は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が68,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が225,000であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含

有率は84.5質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は15.5質量%であった。

[0178] <ポリマー組成物17：3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を464g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.36g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を736g、失活のためのエタノール量を0.765gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物17)を得た。

[0179] ポリマー組成物17のスチレンの含有量はポリマー組成物18全体に対して38.5質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は35.3 mPa・sであった。

[0180] ポリマー組成物17は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が51,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が166,700であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は83.0質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は17質量%であった。

[0181] <ポリマー組成物18：3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を520g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.46g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を680g、カップリング剤としてテトラエトキシシラン、失活のためのエタノール量を0.728gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物18)を得た。

[0182] ポリマー組成物18のスチレンの含有量はポリマー組成物19全体に対して43.2質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は12.5

mPa・sであった。

[0183] ポリマー組成物18は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が50,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が165,000であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は91.0質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は9質量%であった。

[0184] <ポリマー組成物19：3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を475g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.84g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を725g、失活のためのエタノール量を0.796gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物(ポリマー組成物19)を得た。

[0185] ポリマー組成物19のスチレンの含有量はポリマー組成物20全体に対して39.4質量%であり、15質量%トルエン溶液における粘度は12.3mPa・sであった。

[0186] ポリマー組成物19は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が40,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が134,000であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は85.8質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は14.2質量%であった。

[0187] <ポリマー組成物20：3官能カップリングスチレンーブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を418g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で2.13g、ブタジエン(1,3-ブタジエン)の添加量を782g、失活のためのエタノール量を0.632gに変更したこと以外はポリマー組成物1と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームスト

リッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物 20）を得た。

[0188] ポリマー組成物 20 のスチレンの含有量はポリマー組成物 21 全体に対して 34.5 質量%であり、15 質量%トルエン溶液における粘度は 48.3 mPa・s であった。

[0189] ポリマー組成物 20 は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が 64,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が 210,000 であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は 65.5 質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は 34.5 質量% であった。

[0190] <ポリマー組成物 21 : 3 官能カップリングスチレン-ブタジエンブロック共重合体組成物>

スチレンの仕込み量を 410 g、*n*-ブチルリチウムシクロヘキサン溶液の添加量を純分で 2.46 g、ブタジエン（1,3-ブタジエン）の添加量を 790 g、失活のためのエタノール量を 0.730 g に変更したこと以外はポリマー組成物 1 と同様の方法で重合、失活、安定剤添加、スチームストリッピング、脱水、乾燥を行って粘接着剤用ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物 21）を得た。

[0191] ポリマー組成物 21 のスチレンの含有量はポリマー組成物 22 全体に対して 33.5 質量%であり、15 質量%トルエン溶液における粘度は 43.1 mPa・s であった。

[0192] ポリマー組成物 21 は、 $((A-B)_3X)$ と、 $(A-B)$ の混合物であり、 $(A-B)$ の数平均分子量が 51,000、 $((A-B)_3X)$ の数平均分子量が 170,000 であった。また、 $(A-B)$ のブロック共重合体の含有率は 48.0 質量%であり、 $((A-B)_3X)$ の含有率は 52.0 質量% であった。

[0193] ポリマー組成物 1 ~ ポリマー組成物 21 の物性について、下記の表 1 にまとめる。

[0194] [実施例 1]

ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物 1）100 質量部に対して、粘着付与剤としてアルコン M100（荒川化学工業（株）製）を 300 質量部、軟化剤として、ダイアナプロセスオイル PW-90（出光興産（株）製）を 100 質量部の配合比で配合し、180℃×30 分間、加圧双腕型ニーダー（型式：D0.3-3、（株）森山製作所）で溶融混練し、淡黄色の均一な、ホットメルト型粘接着剤組成物を得た。

[0195] なお、粘接着剤組成物には、前記ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物 1）100 質量部に対して、安定剤として 2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレートを 1 質量部配合した。

[0196] 上述した粘接着剤組成物の物性の測定方法に従い、測定した結果、溶融粘度（at. 140℃）は 1,320 mPa・s であり、軟化点は 79.6℃であった。また、塗工性、吐出安定性、表面肌は良好であり、ループタックは 4.6 N/15 mm、粘着力は 10.4 N/10 mm であり、実用上十分に良好であった。

[0197] [実施例 2～9]、[比較例 1～12]、[参考例 1～4]

下記表 2～5 に示す配合に従い、前記の各ブロック共重合体組成物（ポリマー組成物 2～21）、粘着付与剤にはアルコン M100、軟化剤にはダイアナプロセスオイル PW-90 を使用して、実施例 1 と同様の操作を行い、それぞれ粘接着剤組成物を作製し、特性を評価した。なお、30 分混練してもトルクが安定しない場合は、トルクが安定するまで混練した。

[0198]

[表1]

ポリマー組成物		1	2	3	4	5	6	7	8
成分(b)の構造		3官能Cup	2官能Cup	4官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup
スチレン量(質量%)		38.1	36.6	35.6	22.4	29.7	45.3	54.8	34.9
15%トルエン溶液における粘度(mPa・s)		24.6	31.5	26.5	33.2	32.5	22.1	20.7	29.7
成分(a)の含有量(%)		67.1	52.9	63.5	56.3	59.2	70.6	75	73.0(8.5/64.5)
数平均分子量(万)	成分(b)	15.9	9.7	13.9	17.8	16.5	14.8	12	18.5
	成分(a)	4.8	5.1	3.4	5.4	5	4.5	3.6	5.8
数平均分子量比		3.313	1.902	4.088	3.296	3.3	3.289	3.333	3.19
ポリマー組成物		9	10	11	12	13	14	15	16
成分(b)の構造		3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup
スチレン量(質量%)		47.8	45.1	35.1	26.9	30.2	34	40.2	45.1
15%トルエン溶液における粘度(mPa・s)		8.8	14.5	33.5	44.7	20.1	24.9	30.1	37.5
成分(a)の含有量(%)		51.8	58.2	67.5	76	45.6	55	75.5	84.5
数平均分子量(万)	成分(b)	6.7	9.9	19.5	22.86	10.6	14.6	19.2	22.5
	成分(a)	2	3	5.9	6.9	3.2	4.5	5.8	6.8
数平均分子量比		3.35	3.3	3.305	3.313	3.313	3.244	3.31	3.309
ポリマー組成物		17	18	19	20	21			
成分(b)の構造		3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup	3官能Cup			
スチレン量(質量%)		38.5	43.2	39.4	34.5	33.5			
15%トルエン溶液における粘度(mPa・s)		35.3	12.5	12.3	48.3	43.1			
成分(a)の含有量(%)		83	91	85.8	65.5	48			
数平均分子量(万)	成分(b)	16.67	16.5	13.4	21	17			
	成分(a)	5.1	5	4	6.4	5.1			
数平均分子量比		3.267	3.3	3.35	3.28	3.33			

[0199] [表2]

ポリマー組成物	タイプ	実施例1	比較例1	比較例2	比較例3	実施例2	実施例3	比較例4	実施例4
	配合量(質量部)	1	2	3	4	5	6	7	8
粘着付与剤 (質量部)		300	200	300	300	300	300	300	300
軟化剤 (質量部)		100	100	100	100	100	100	100	100
ブロック共重合体の仕上がり性		○	○	○	○	○	○	○	○
溶解性		○	○	○	○	○	○	○	○
熔融粘度 (mPa・s)		1,320	1,670	1,350	1,850	1,790	1,480	1,350	1,360
軟化点 (°C)		79.6	80.5	78.0	72.1	80.1	82.1	85.6	76.7
塗工性		○	○	○	○	○	○	△	○
吐出安定性 (mPa・s)		7	20	9	12	4	8	15	3
表面肌		○	○	△	△	◎	○	○	◎
臭気		△	△	△	△	△	△	△	△
混練後の粘接着剤組成物の色		黄色	淡黄色	黄色	黄色	淡黄色	黄色	黄色	淡黄色
ルーブタック (N/15mm)		4.6	2.3	4.2	4.7	4.8	3.7	1.8	8.9
粘着力 (N/10mm)		10.4	11.3	10	10.2	9.8	9.2	6.5	9.7
保持力 (分)		211	182	85	26	160	227	283	222

[0200]

[表3]

ポリマー組成物	タイプ	比較例5	比較例6	実施例5	比較例7	比較例8	実施例6	実施例7	比較例9
	配合量(質量部)	9	10	11	12	13	14	15	16
粘着付与剤 (質量部)		100	100	100	100	100	100	100	100
軟化剤 (質量部)		300	200	300	300	300	300	300	300
ブロック共重合体の仕上がり性		×	○	○	○	○	○	○	○
溶解性		○	○	○	△	○	○	○	○
熔融粘度 (mPa・s)		980	1,210	1,910	3,300	1,670	1,750	1,880	1,960
軟化点 (°C)		71.7	76.3	82.9	91.3	78.8	79.4	76.5	72.1
塗工性		○	○	○	×	○	○	○	○
吐出安定性 (mPa・s)		21	19	2	4	18	9	3	2
表面肌		○	○	◎	×	○	○	◎	△
臭気		△	△	△	△	△	△	△	△
混練後の粘接着剤組成物の色		淡黄色	淡黄色	黄色	黄色	黄色	黄色	黄色	黄色
ループタック (N/15mm)		3.6	3.9	4.1	4.5	3.2	3.9	4.4	4.9
粘着力 (N/10mm)		8.2	8.5	9.8	11.2	9.2	10.2	9.8	9.5
保持力 (分)		21	160	218	312	208	231	165	87

[0201] [表4]

ポリマー組成物	タイプ	実施例8	比較例10	実施例9	比較例11	比較例12
	配合量(質量部)	17	18	19	20	21
粘着付与剤 (質量部)		100	100	100	100	100
軟化剤 (質量部)		300	300	300	300	300
ブロック共重合体の仕上がり性		○	△	○	○	○
溶解性		○	○	○	△	△
熔融粘度 (mPa・s)		1,250	1,080	980	3,500	3,300
軟化点 (°C)		83.5	80.7	80.5	89.8	84.3
塗工性		○	○	○	△	△
吐出安定性 (mPa・s)		8	13	9	8	15
表面肌		◎	○	◎	×	△
臭気		◎	△	○	△	△
混練後の粘接着剤組成物の色		無色	黄色	無色	黄色	黄色
ループタック (N/15mm)		4.9	4.3	5.2	4.8	3.2
粘着力 (N/10mm)		9.2	7.5	8.8	10.1	9.8
保持力 (分)		180	135	165	320	140

[0202]

[表5]

		参考例1	参考例2	参考例3	参考例4
ポリマー組成物	タイプ	1	1	1	1
	配合量(質量部)	100	100	100	100
粘着付与剤 (質量部)		70	550	300	300
軟化剤 (質量部)		100	100	30	250
溶解性		×	○	△	○
熔融粘度 (mPa・s)		3240	820	3010	750
軟化点 (°C)		104	73	101	72
塗工性		△	○	×	○
ループタック (N/15mm)		4.6	0.8	0.4	3.9
粘着力 (N/10mm)		3.2	11	3.7	21.1
保持力 (分)		336	111	453	98

[0203] 実施例1～9の粘接着剤組成物は、いずれもループタック（粘着性）、粘着力の各粘接着剤特性が良好で、かつこれらの性能バランスに優れ、溶解性、塗工性、吐出安定性、表面肌にも優れていることが分かった。

[0204] また、成分（a）：80質量%を超えて、90質量%以下と成分（b）：10質量%以上、20質量%未満とを含む粘接着剤用ブロック共重合体組成物であれば、上記性能に加え、臭気が少なく、熔融混練後の粘接着剤組成物の色も変色が少なく、優れていることが分かった。

[0205] さらに、成分（b）の数平均分子量が160,000以上で、成分（a）：50質量%を以上、80質量%以下と成分（b）：20質量%以上、50質量%以下とを含む粘接着剤用ブロック共重合体組成物であれば、上記性能に加え、吐出安定性が優れ、吐出されたストランドの表面肌も優れていることが分かった。

[0206] 本出願は、2012年7月25日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願2012-165195）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

産業上の利用可能性

[0207] 本発明の粘接着剤組成物は、各種粘着テープ・ラベル類、感圧性薄板、感圧性シート、表面保護シート・フィルム、各種軽量プラスチック成型品固定用裏糊、カーペット固定用裏糊、タイル固定用裏糊、接着剤等に利用でき、特に、粘着性テープ用、粘着性シート・フィルム用、粘着性ラベル用、表面

保護シート・フィルム用、衛生材料用の粘接着剤として産業上の利用可能性がある。

請求の範囲

- [請求項1] 成分（a）：ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）と、を含有し、数平均分子量が10,000以上、60,000以下であるブロック共重合体：50質量%以上、90質量%以下と、
- 成分（b）：ビニル芳香族単量体単位を主体とする重合体ブロック（A）と、共役ジエン単量体単位を主体とする重合体ブロック（B）と、を含有し、数平均分子量が120,000を超えて、200,000以下であるブロック共重合体：10質量%以上、50質量%以下と、を含み、
- 前記ビニル芳香族単量体単位の含有量が25～50質量%であり、
- 15質量%トルエン溶液における粘度が10～40mPa・sであり、
- 前記成分（a）に対する前記成分（b）の数平均分子量比が2.0～4.0である、
- 粘接着剤用ブロック共重合体組成物。
- [請求項2] 前記成分（a）は、式（A-B）によって表されるジブロック共重合体であり、
- 前記成分（b）は、式（A-B）₃X（Xは、カップリング剤の残基又は重合開始剤の残基を示す。）によって表される3分岐ブロック共重合体である、
- 請求項1に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。
- [請求項3] 前記成分（a）に対する前記成分（b）の前記数平均分子量比が2.3～3.6である、請求項1又は2に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。
- [請求項4] 前記成分（a）：80質量%を超えて、90質量%以下と、
- 前記成分（b）：10質量%以上、20質量%未満と、を含む、請求項1～3のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。

物。

- [請求項5] 前記成分（a）：50質量%以上、80質量%以下と、
前記成分（b）：20質量%以上、50質量%以下と、を含む、請求項1～3のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。
- [請求項6] 前記成分（b）の数平均分子量が130,000以上、200,000以下である、請求項1～5のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。
- [請求項7] 前記成分（b）の数平均分子量が160,000以上、200,000以下である、請求項1～6のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物。
- [請求項8] 請求項1～7のいずれか一項に記載の粘接着剤用ブロック共重合体組成物：100質量部と、
粘着付与剤：100～400質量部と、
軟化剤：50～150質量部と、
を、含有する、粘接着剤組成物。