

431.484

CO9J//CO80; 641M

MEMORIA DESCRIPTIVA

Correspondiente a la solicitud de registro de una Patente de Invención que, por veinte años se solicita para España, a favor de la firma FUJI PHOTO FILM CO., LTD., de nacionalidad jurídica japonesa, domiciliada en Kanagawa (Japón), Nº 210, Nakanuma, Minami Ashigara-Shi - - - - -

p o r

" MEJORAS EN LA OBTENCION DE COMPOSICIONES ADHESIVAS PARA LA SEPARACION DE CADA UNIDAD DE HOJAS DE CAPAS MULTIPLES "

El presente invento se refiere a un procedimiento para separar hojas de capas múltiples y a su composición adhesiva.

La publicación de patente nº 35.696/71, las solicitudes de patentes japonesas núms. 30.795/68, 50.377/68, etc. describen en detalle métodos para separar las hojas de cada juego de hojas de capas múltiples, por ejemplo, de papeles copiadores sensibles a la presión (descritos, por ejemplo, en las patentes de EE.UU. 2.711.365; 2.712.501; 2.730.456; 2.730.457; 3.418.250; 3.432.327; etc.) y una composición adhesiva para ello.

5

10

De acuerdo con la técnica anterior, se usan, como componente adhesivo, gelatina, derivados de gelatina, productos de degradación de gelatina o una de sus mezclas, con una emulsión acuosa de resina (es decir, un látex de alto polímero).

5 Sin embargo, las gelatinas tienden a descomponerse y experimentan gran cambio de viscosidad, dependiendo de la temperatura. Por lo tanto, los adhesivos conteniendo gelatinas, han fallado en alcanzar las deseadas características respecto a la posibilidad de almacenaje, adhesividad y separabilidad.

10 (El término de "separabilidad" designa la facilidad de separación de las hojas de cada juego. Cuando puede efectuarse bien la separación se dice que la separabilidad es buena, mientras que si la separación es difícil, se dice que la separabilidad es mala). Además, puesto que los látices, añadidos con el fin de incrementar la adhesividad, carecen de separabilidad, incluso un adhesivo ha
15 sido deseable que se mejore como un producto comercial.

Por lo tanto, es un objeto del presente invento procurar un método para separar las hojas de cada juego de hojas de capas múltiples con facilidad y exactitud.

20 Otro objeto del presente invento es procurar una composición adhesiva para separar las hojas de cada juego de hojas de capas múltiples, que es excelente de almacenar, tiene excelente adhesividad, separabilidad entre hojas particulares y velocidad de secado.

Como resultado de extensas investigaciones para alcanzar los
25 objetos arriba descritos, se ha descubierto que los objetos citados se consiguen usando una composición adhesiva conteniendo un condensado de ácido naftaleno-sulfónico-formaldehído. Como resultado de extensas investigaciones adicionales para alcanzar los objetivos arriba mencionados, también se ha descubierto que los arriba
30 citados objetos se consiguen usando un adhesivo, que contiene

un condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído y una emulsi3n de material de alto peso molecular.

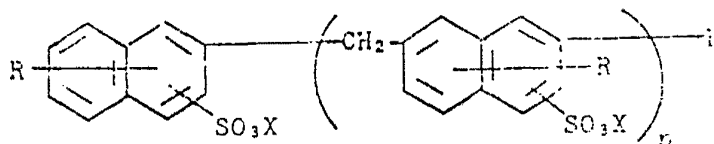
En el presente invento, "separaci3n" significa que cada juego de hojas de capas mltiples se adhiere selectivamente, cuando
5 las hojas de capas mltiples son separadas, despu3s de haberse aplicado un adhesivo al lado cortado de hojas de capas mltiples (es decir, el extremo de las hojas superpuestas). Este m3todo de separaci3n se explicar3 m3s abajo respecto al uso de papeles copiadores sensibles a la presi3n, como un ejemplo de hojas de capas
10 mltiples. El t3rmino de "papeles copiadores sensibles a la presi3n" segun se utiliza aqu3, designa la combinaci3n de una hoja, que comprende un soporte que tiene encima una capa de microc3psulas conteniendo formador de color (mencionada a continuaci3n como Papel A), una hoja comprendiendo un soporte teniendo sobre su
15 superficie una capa reveladora de color y en la cara posterior, una capa de microc3psulas segun se describe arriba (a la que se har3 referencia seguidamente como Papel B) y una hoja comprendiendo un soporte, teniendo sobre el mismo una capa reveladora de color (mencionada a continuaci3n como Papel C), o la combinaci3n de
20 Papel A y Papel C.

En el caso de preparar juegos de combinaciones de tales papeles copiadores sensibles a la presi3n, los mismos se superponen uno sobre otro en el orden de, por ejemplo, A-C, A-C, A-C,.....; A-B-B... -B-C, A-B-B.....-B-C, A-B-B.....-B-C; o semejantes, segun
25 do de corte de los conjuntos resultantes. Cuando se aplica una composici3n adhesiva especifica al lado cortado y se seca, ocurre adherencia selectivamente solo entre A-C 3 A-B-B.....-B-C y no ocurre entre C-A. La fuerza de adherencia entre A-C 3 A-B-B.....-B-C tiene que ser tal, que no ^{se}separen entre s3 por simple manipulaci3n. Tamb3n, se prefiere que no ocurra adherencia entre C-A, con-
30

siderándose esto como buena separabilidad. Como se ha descrito arriba, cuando se aplica la composición adhesiva a papeles copiadores sensibles a la presión, pueden separarse o clasificarse fácilmente juegos de papeles copiadores sensibles a la presión, comprendiendo cada juego un número definido de papeles necesarios para copiar.

La composición adhesiva en una ejecución de este invento, incluye el condensado de naftalenosulfonato-formaldehído y en otra ejecución de este invento, incluye el condensado de naftalenosulfonato-formaldehído y una emulsión de material de alto peso molecular.

Los condensados de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, (o condensados de naftalenosulfonato-formaldehído) empleados en el presente invento, son preferentemente aquellos representados por la siguiente fórmula general.



en que los $\text{R}'\text{s}$ que pueden ser iguales o diferentes, representan cada uno, un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (puede estar presente en el anillo una pluralidad de $\text{R}'\text{s}$); X representa un átomo de hidrógeno, un átomo de metal de álcali (por ejemplo, sodio o potasio) o un grupo amonio; y n representa un número entero.

De los condensados, representados por la arriba citada fórmula general, aquellos, en que el grupo alquilo tiene de 1 a 18 átomos de carbono, X representa un átomo de sodio o potasio o un grupo de amonio, y n representa de 1 a 13, pueden usarse con facilidad y, por lo tanto, se prefieren. Ejemplos adecuados de grupos

alquilo para R incluyen metilo, etilo, propilo, n-butilo, butilo terciario, pentilo, hexilo, heptilo, octilo, nonilo, decilo, undecilo, dodecilo, tridecilo, tetradecilo, pentadecilo, hexadecilo, heptadecilo, octadecilo, etc. En particular, aquellos condensados, en que el sustituyente R representa un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo, teniendo de 1 a 4 (en particular de 1 a 3) átomos de carbono, X representa un átomo de sodio o de potasio y n representa un número entero de 1 a 5 (en particular, 2 a 5) se prefieren especialmente. Los varios compuestos representados por la arriba citada fórmula general, son conocidos como típicos agentes superficie activos aniónicos y están fácilmente disponibles.

El grado de polimerización y el sustituyente para el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, representado por la arriba ilustrada fórmula general, puede influir sobre el efecto del presente invento. Por lo tanto, en algunos casos es útil una mezcla de condensados, teniendo diferentes grados de polimerización y/o diferentes sustituyentes.

En la primera ejecución de la composición del presente invento, el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, preferentemente está presente en la composición en una proporción de alrededor de 5 a 40% de peso, particularmente 10 a 30% de peso. Un ejemplo muy típico de la composición comprende una solución acuosa del arriba mencionado condensado a una concentración de alrededor de 5 a 40% de peso.

La emulsión del material de alto peso molecular, que es un componente de la segunda ejecución de la composición adhesiva del presente invento, es un líquido, en que se emulsiona en agua un material de alto peso molecular, insoluble en agua o ligeramente soluble. Tal emulsión es formada por material de alto peso molecular, capaz de formar una película al ser secado e incluye

también los así llamados látices. Para definir la emulsión del material de alto peso molecular, según se usa en el presente invento, en términos de propiedades físicas, la emulsión contiene alrededor de 10 a 70% de sólidos y tiene una viscosidad de alrededor de 0,5 a 1.000 poises, teniendo el material de alto peso molecular un tamaño de partícula de alrededor de 0,1 a 5μ .

Como procedimiento para la producción de la emulsión de material de alto peso molecular, puede emplearse un procedimiento, que comprende la polimerización de emulsión y un procedimiento comprendiendo el emulsionar y dispersar una solución del material de alto peso molecular. Las emulsiones, obtenidas por cualquier procedimiento, se incluyen en el presente invento. Tales procedimientos para la producción de emulsiones están descritos en detalle, por ejemplo, en las obras, Muroi, Chemistry of High Molecular Latexes (publicado por Kobunshi Kankokai), Sakakibara y otros, Synthetic Rubber Handbook (publicado por Asakura Shoten), Philip Sherman, Emulsion Science (publicado por Academic Press Inc., Londres), etc.

Estos materiales de alto peso molecular pueden seleccionarse casi sin tener en cuenta el peso molecular.

Son ejemplos de látices obtenidos por polimerización de emulsión, los látices de goma de estireno-butadieno (por ejemplo, aquellos que contienen alrededor de 25 a 75 partes de peso, preferentemente 65 a 40 partes de peso, de estireno y alrededor de 75 a 25 partes de peso, preferentemente 35 a 60 partes de peso, de butadieno y, más preferentemente, contiene de 1 a 6 partes de peso de ácido acrílico, un éster de ácido acrílico, ácido metacrílico o un éster de ácido metacrílico), látices de goma de butadieno-acrilonitrilo (conteniendo, por ejemplo, alrededor de 75 a 60 partes de peso de butadieno y alrededor de 25 a 40 partes de peso de acrilonitrilo), látices de goma de cloropreno, látices de ace

tato de vinilo (por ejemplo, acetato de polivinilo, copolímeros de acetato de vinilo y ácido acrílico o metacrílico y sus ésteres (por ejemplo, metil acrilato, etil acrilato, metil metacrilato, etc.), particularmente preferente, copolímeros de acetato de vino-
5 lo-éster acrílico), látices acrílicos (por ejemplo, copolímeros de éster acrílico, tales como copolímeros de metil metacrilato-etil acrilato, copolímeros de metil acrilato-etil acrilato, copolímeros de metil metacrilato-butil acrilato, copolímeros de metil acrilato-etil, acrilato-butil acrilato, etc.), y copolímeros de monómero insaturado-éster acrílico, tales como copolímeros de estireno-éster acrílico, copolímeros de butadieno-éster acrílico, copolímeros de estireno-éster metacrílico, copolímeros de butadieno-éster metacrílico, etc.; particularmente preferible, copolímeros de estireno-éster acrílico o copolímeros de butadieno-éster acrílico con una proporción de alrededor de 10 a 80 partes de peso, preferentemente
10 40 a 60 partes de peso, de estireno, y alrededor de 90 a 20 partes de peso, preferentemente de 60 a 40 partes de peso de un éster acrílico, ó 25 a 50 partes de peso, preferentemente 30 a 50 partes de peso de butadieno y alrededor de 75 a 50 partes de peso, preferentemente 70 a 50 partes de peso de un éster acrílico), látices
15 de cloruro de vinilo y semejantes. Son ejemplos de emulsiones obtenidas disolviendo un material de alto peso molecular en un disolvente y emulsionando y dispersando la solución en agua, emulsiones de polibutadieno, emulsiones de poliisopreno, emulsiones de goma de butilo, etc. Son emulsiones particularmente útiles, de materiales de alto peso molecular, en el presente invento, látices de estireno-butadieno y látices acrílicos. Se prefieren particularmente los látices conteniendo grupos carboxilo o éster.
20
25

En esta segunda ejecución de la composición del presente invento, el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, está presente en una proporción de alrededor de 5 a 30% de peso, par-
30

ticularmente 7 a 25% de peso y la emulsión del material de alto peso molecular está presente en una proporción de alrededor de 2 a 20% de peso, particularmente 3 a 15% de peso en una base de ag lidos.

5 La composición adhesiva puede contener, si se desea, un aglu-
tinante soluble en agua. Hasta ahora, el uso del aglutinante para
una composición adhesiva para la separación ha comprendido gene-
ralmente un inconveniente, porque resulta pobre separabilidad, y
la adherencia requiere un prolongado periodo de tiempo para com-
10 pletarse, aunque la fuerza de adherencia es grande. Sin embargo,
en el presente invento, puede obtenerse una composición teniendo
excelente separabilidad y adherencia por el uso combinado de los
aglutinantes arriba descritos. Por lo tanto, se amplía el alcance
aplicable.

15 Los ejemplos de estos aglutinantes solubles en agua, inclu-
ye, por ejemplo, altos polímeros naturales, tales como proteínas
(por ejemplo, gelatina, goma arábica, albúmina, caseína, etc.), ce-
lulosas (por ejemplo, carboximetil celulosa, hidroxietil celulo-
sa, etc.) sacaruros (por ejemplo, agar-agar, alginato sódico, al
20 midón, carboximetil almidón, etc.) y compuestos sintéticos de al-
to peso molecular, tales como polivinil alcohol, polivinil pirro-
lidona, polímeros de ácido acrílico (por ejemplo, ácido poliacrí-
lico, poliacrilamida, polímero de ácido acrílico-acrilamida, etc.),
y semejantes.

25 Estos aglutinantes, solubles en agua, se usan para formar
una película. Aquellos, que tienen propiedades adhesivas y poseen
la función de que la adherencia pasa selectivamente entre las ho-
jas, se prefieren mejor. Carboximetil celulosa, polivinil alco-
hol, etc. son ejemplos de tales aglutinantes.

30 Cuando la composición adhesiva contenga un aglutinante solu-

ble en agua, el aglutinante puede estar presente en una proporción de alrededor de 0,1 a 100% de peso, en particular, 0,5 a 50% de peso, basado en el peso del condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído. También, cuando están presentes conjuntamente las emulsiones del material de alto peso molecular y el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, el aglutinante soluble en agua puede ser empleado en una proporción de alrededor de 1 a 20% de peso, particularmente de 2 a 10% de peso, basado en el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído y los componentes sólidos de la emulsión.

La composición del presente invento puede contener, si se desean agentes superficie activos catiónicos, aniónicos o no iónicos, tales como cloruro de trimetiloctadecilamonio, oleato sódico, ésteres de polioxietileno alquilarilo, lignín sulfonato de sodio, etc. El agente superficie activo puede estar presente en una proporción de alrededor de 0,1 a 5% de peso, basado en el peso de condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído o el peso del condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído y los componentes sólidos de la emulsión.

Las microcápsulas para ser usadas para los papeles copiadores sensibles a la presión, pueden ser fácilmente producidas de acuerdo con métodos ya bien conocidos. Es decir, puesto que la densidad de un formador de color es fácilmente controlada en la producción de microcápsulas en la etapa de disolver el formador de color, la producción de las microcápsulas no limita de ningún modo el presente invento.

Puede efectuarse microencapsulación usando un método de coagulación (según se describe en las patentes de EE.UU. núms. 2.800.457; 2.800.458; 3.041.289; 3.687.865, etc.), un método de polimerización interfacial (según se describe en las patentes de EE.UU. núms.

3.492.380; 3.577.515; patentes británicas números 950.443; 1.046.409; 1.091.141; etc.) un método de polimerización interna (según se describe en la patente británica 1.237.498; en las patentes francesas 2.060.818; 2.090.862; etc.) un método de polimerización externa (según se describe en la patente británica 989.264; publicaciones de patentes japonesas núms. 12.380/62; 14.327/62; 29.483/70; 7.313/71; 30.282/71, etc.) y semejantes.

Los disolventes, que pueden usarse para disolver el formador de color, no están limitados en absoluto en el presente invento y pueden usarse cualesquiera de aquellos conocidos hasta ahora.

Ejemplos de ellos incluyen, por ejemplo, aceites sintéticos aromáticos (por ejemplo, naftaleno alquilizado, bifenilo alquilizado, terfenilo hidrogenado, difenilmetano alquilizado (en que su mitad de alquilo tiene alrededor de 1 a 5 átomos de carbono y el número de grupos álcali es de 1 a 4), etc., fracciones de petróleo (por ejemplo, queroseno, nafta, aceite de parafina, etc.), aceites sintéticos alifáticos (por ejemplo, parafina clorada, etc.) aceites vegetales (por ejemplo, aceite de semilla de algodón, aceite de soja, aceite de linaza, etc.) y una de sus mezclas. La concentración de la solución de formador de color no está particularmente limitada. Los expertos en la técnica pueden producir fácilmente microcápsulas utilizando la concentración de la solución de formador de color convencionalmente empleada para los papeles copiadores sensibles a la presión (alrededor de 1 a 10%).

El formador de color, que puede ser usado en el presente invento, es un compuesto sustancialmente incoloro, capaz de formar un color, cuando se pone en contacto con un ácido sólido y también puede ser definido como un compuesto orgánico electrón-donante, incoloro. La clase y las propiedades del formador de color, no influyen sustancialmente sobre la composición adhesiva del presente

invento y así puede emplearse un amplio alcance de formadores de color. Ejemplos típicos de formadores de color incluyen, por ejemplo, compuestos de triarilmetano, compuestos de diarilmetano, compuestos de xanteno, compuestos de tiacina, compuestos de spiropirano, etc.

5 Más abajo se ilustran compuestos formadores de color específicos.

Son ejemplos adecuados de compuestos de trifenilmetano, 3,3-bis(p-dimetilaminofenil)-6-dimetilaminoftaluro, es decir, lactona violeta cristal, 3,3-bis(p-dimetilaminofenil)ftaluro, 3-(p-dimetilaminofenil)-3-(1,2-dimetilindol-3-il)ftaluro, 3-(p-dimetilaminofenil)-3-(2-metilindol-3-il)ftaluro, 3-(p-dimetilaminofenil)-3-(2-fenilindol-3-il)ftaluro, 3,3-bis-(1,2-dimetilindol-3-il)-5-dimetilaminoftaluro, 3,3-bis-(1,2-dimetilindol-3-il)-6-dimetilaminoftaluro, 3,3-bis-(9-etilcarbazol-3-il)-5-dimetilaminoftaluro, 3,3-bis-(2-fenilindol-3-il)-5-dimetilaminoftaluro, 3-p-dimetilaminofenil-3-(1-metilpirrol-2-il)-6-dimetilaminoftaluro, etc.

15

Son ejemplos de compuestos de difenilmetano, 4,4'-bis-dimetilaminobenzhidrina bencil éter, N-halofenilleucoauramina, N-2,4-5-triclorofenilleucoauramina, etc.

Son ejemplos típicos de compuestos de xanteno, rodamina-B-anilinolactamo, rodamina-(p-nitroanilino)lactamo, rodamina-B-(p-cloroanilino)lactamo, 7-dimetilamino-2-metoxifluorano, 7-dietilamino-2-metoxifluorano, 7-dietilamino-3-cloro-2-metilfluorano, 7-dietilamino-3-(acetilmetilamino)fluorano, 7-dietilamino-3-(dibencilamino)fluorano, 7-dietilamino-3-(metilbencilamino)fluorano, 7-dietilamino-3-(cloroetilmetilamino)fluorano, 7-dietilamino-3-(dietilamino)fluorano, etc.

25

Son ejemplos adecuados de compuestos de tiacina, azul de benzil-leucometileno, azul de p-nitrobencilleucometileno, etc.

Son ejemplos ilustrativos de compuestos spiro, 3-metil-spiro-dinaftopirano, 3-etil-spiro-dinaftopirano, 3,3'-dicloro-spiro-dinaftopirano, 3-bencil-spiro-dinaftopirano, 3-metil-nafto-(3-metoxibenzo)-

30

spiropirano, 3-propil-spiro-dibenzodipirano, etc.

Los formadores de color, arriba ilustrados, pueden ser apropiadamente seleccionados y usados individualmente o en combinación.

5 Así puede obtenerse una solución conteniendo microcápsulas. Las microcápsulas son deseablemente de un tipo mononuclear. Sin embargo, también pueden usarse suficientemente microcápsulas del tipo multi-nuclear para alcanzar los objetivos del presente inven-
to. El tamaño de las microcápsulas es usualmente de alrededor de
10 1 a 500 μ , preferentemente de alrededor de 2 a 50 μ . Pueden usarse microcápsulas de alrededor del mismo tamaño en el presente invento.

 Así, la composición adhesiva del invento es muy superior a los adhesivos separadores convencionales y puede encontrar más
15 amplias aplicaciones.

 La solución revestidora de microcápsulas se prepara usualmente como una dispersión de microcápsulas y, por lo tanto, la
dispersión puede ser revestida sobre un soporte como tal. También
la dispersión puede ser revestida, con o sin separación de las mi-
20 crocápsulas, desde la dispersión de microcápsulas, añadiendo un aglutinante, tal como un látex (por ejemplo látex de goma de estireno-butadieno, etc.), sustancia altamente polímera soluble en agua (por ejemplo, almidón, carboximetil celulosa, polivinil alcohol, goma arábiga, caseína, gelatina, etc.) o semejantes. Ade-
25 más, puede añadirse a la solución revestidora de microcápsulas o a la capa de microcápsulas, un agente reforzador de microcápsulas, tal como un polvo fino de celulosa (como se expone en la patente de EE.UU. número 2.711.375) polvo fino de polímero (como se expone en la patente de EE.UU. nº 3.625.736), polvo fino de almi-
30 dón (como se expone en la patente británica nº 1.232.347), micro

cápsulas libres de formador de color (como se expone en la patente británica nº 1.235.291), etc. El agente reforzador de microcápsulas preferentemente no está presente como una capa, sino esparcido en la capa de microcápsulas o en su superficie.

5 Los soportes adecuados incluyen, un papel, una película plástica, un papel revestido con resina, un papel sintético y semejantes. La capa de microcápsulas es revestida por lo menos sobre la superficie del soporte, encima o debajo de la capa reveladora (descrita posteriormente) o sobre la superficie de soporte, opuesta a
10 la capa reveladora.

En esta memoria descriptiva, un revelador de color designa un ácido sólido, más específicamente, un ácido sólido electrón aceptante. Se describen reveladores de color adecuados en las antedichas patentes precedentes. Son ejemplos ilustrativos específicos,
15 arcillas, tales como arcilla ácida, arcilla activa, atapulgita, etc.; ácidos orgánicos, tales como compuestos carboxi aromáticos (por ejemplo, ácido salicílico, etc.) compuestos orgánicos hidroxilados (por ejemplo, p-t-butilfenol, p-t-amilfenol, o-clorofenol, m-clorofenol, p-clorofenol, una sal metálica de los mismos (por ejemplo, sal de zinc, etc.), etc.); una mezcla de un ácido orgánico y un compuesto metálico (por ejemplo, óxido de zinc, etc.), polímeros ácidos, tales como resinas de fenol-formaldehído, resinas de fenol-acetileno, etc. Se dan descripciones de reveladores de color también en las patentes de EE.UU. núms. 3.501.331; 3.669.711; 3.427.180
20 3.455.721; 3.516.845; 3.634.121; 3.672.935; 3.732.120; solicitudes de patentes japonesas núms. 48.545/70; 49.339/70; 83.651/70; 84.539/70; 93.245/70; 93.246/70; 93.247/70; 94.874/70; 109.872/70; 112.038/70; 112.039/70; 112.040/70; 112.753/70; 112.754/70; 118.978/70; 118.979/70; 86.950/71; etc.

30 El revelador de color puede ser revestido sobre un soporte, jun

to con un aglutinante. Pueden ser soportes adecuados los anteriormente descritos para la capa de formador de color. Son aglutinantes ilustrativos, por ejemplo, látices, tales como el látex de goma de estireno-butadieno, látex de estireno-butadieno-acrilonitrilo, látex de copolímero de estireno-anhídrido maléico, etc; compuestos de alto peso molecular naturales, solubles en agua, tales como proteínas (por ejemplo, gelatina, goma arábiga, albúmina, caseína, etc.), celulosas, (por ejemplo, carboximetil celulosa, hidroxietil celulosa, etc.), sacaruros (por ejemplo, agar-agar, alginato sódico, almidón, carboximetil almidón, etc.); compuestos sintéticos altamente polímeros solubles en agua, tales como polivinil alcohol, polivinil pirrolidona, ácido poliacrílico, poliacrilamida, etc.; compuestos de alto peso molecular orgánicos, solubles en disolvente, tales como nitrocelulosa, etil celulosa, poliéster, polivinil acetato, cloruro de polivinilideno, copolímero de cloruro de vinilo-vinilideno, etc. Estos aglutinantes también pueden ser usados como un aglutinante para la dispersión de microcápsulas. Los aditivos conocidos hasta ahora, también pueden ser incorporados, si se desea, en la capa reveladora de color.

Puede decirse, que el mejor componente es el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, porque no solo no posee las desventajas, que se encuentran con las gelatinas, sino que también hace que sea separable la composición adhesiva. Por lo tanto, la composición adhesiva del presente invento posee suficiente separabilidad para separar en abanico cada juego de hojas de capas múltiples. Además, la composición adhesiva del presente invento puede penetrar selectivamente entre hojas y, después de la penetración, la composición adecuadamente humedece las hojas.

Sin embargo, si la fuerza de adherencia del condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído solo es todavía insuficiente y puesto que la separabilidad de la emulsión del material de alto

peso molecular solo, no es buena, aunque su fuerza de adherencia sea bastante alta, en contraste, una mezcla del condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído y la emulsión del material de alto peso molecular, procura una composición adhesiva, excelente en fuerza de adherencia y separabilidad, si se compara con gelatina y sus derivados, látices, solo condensados de ácido naftalenosulfónico-formaldehído y sola la emulsión de sustancia de alto valor molecular. Así, la composición adhesiva del presente invento, es mucho más excelente que los adhesivos convencionales y puede encontrar más amplias aplicaciones.

El presente invento se ilustrará ahora con mayor detalle haciendo referencia a los siguientes ejemplos. Papeles A, B y C, usados en el presente invento, fueron preparados como sigue para confirmar el efecto del presente invento. En los Ejemplos, todas las partes son de peso, a no ser que se indique de otro modo.

Preparación de papel A₁

6 partes de gelatina elaborada al ácido, teniendo un punto isoeléctrico de 8,2 y 4 partes de goma arábiga, se disolvieron en 40 partes de agua caliente a 40°C y se añadió 0,2 partes de aceite rojo de Turquía, como un emulsionante (solución coloide). Después se añadieron, con vigorosa agitación, a la solución coloide arriba descrita, para emulgación, para formar una emulsión del tipo de aceite en agua, 45 partes de diisopropil-naftaleno conteniendo disuelto en el mismo 30% de peso de lactona violeta cristal y 2,5% de peso de azul de benzoil leuconetileno (aceite formador de color). La agitación fue interrumpida cuando el tamaño de las gotitas de aceite llegó a ser de 8 ~ 12 μ . 185 partes de agua caliente a 40°C fueron añadidas a ello. Se añadió a ello una solución acuosa al 20% de ácido clorhídrico continuando la agitación, para ajustar el pH a 4,4. La pared coloide, acumulada alrededor de las

gotitas de aceite, fue gelizada y solidificada enfriando desde el exterior del recipiente, mientras se continuaba la agitación. Se añadieron agitando 1,5 partes de una solución acuosa al 37% de formaldehído, cuando la temperatura del líquido alcanzó 10°C.

5 Además se añadieron 20 partes de una solución acuosa (7% de peso) de la sal sódica de carboximetil celulosa (grado de eterificación: 0,75). Después se añadieron a ello a gotas, una solución acuosa al 10% de peso de hidróxido sódico, hasta que el pH del sistema había alcanzado 10, y la temperatura del sistema se
10 aumentó externamente y se mantuvo durante una hora a 40°C, para obtener una solución A de microcápsulas conteniendo formador de color. A la así obtenida solución A de microcápsulas, se añadieron 5 partes de polvo de celulosa, 3 partes de partículas de almidón de trigo, clasificadas al tamaño de partícula de 15 ~ 25 μ , y 80
15 partes de una solución al 10% de almidón oxidado, para preparar una dispersión de microcápsulas. Esto fue revestido sobre un papel de 40 g/m² en una cantidad de 5,5 gr. (sobre una base de sólidos)/m² usando revestimiento de cuchilla de aire, seguido de de
 secación para obtener papel A₁ para ensayo.

20 Preparación de los papeles C₁ y B₁

 100 partes de arcilla ácida elaborada con ácido sulfúrico, fueron dispersadas en 280 partes de agua conteniendo 6 partes de una solución al 40% de hidróxido sódico usando un homogeneizador. Después se añadieron a ello 50 partes de una solución acuosa al
25 10% de caseinato sódico y 30 partes de látex de goma de estireno-butadieno, y la mezcla resultante fue revestida sobre un papel de 40 g/m² en una cantidad (sobre una base de sólidos) de 8 g/m² usando el método de revestimiento de cuchilla de aire, seguido de desecación. Entonces, el papel revestido resultante fue sometido a calandrado para obtener el papel C₁ revestido para ensayo.
30

También se obtuvo papel revestido B_1 para ensayo, revistiendo la arriba descrita dispersión de microcápsulas sobre la cara opuesta del papel C_1 a la cara revestida en una cantidad de 6 g/m^2 (sobre una base de sólidos) usando un método de revestimiento de cuchilla de aire, seguido de desecación.

Método de ensayo

Los papeles A_1 , B_1 y C_1 fueron superpuestos en el orden de $A_1-B_1-C_1$ para preparar 50 de sus combinaciones, que entonces se cortaron en piezas de $3 \times 5 \text{ cms}$. Después, el adhesivo fue aplicado al lado cortado en una cantidad de 5 g/100 cm^2 , seguido de secado a temperatura ambiente (alrededor de $20 \sim 30^\circ \text{ C}$).

La fuerza de adherencia y separabilidad, se examinaron una hora después del secado, usando los siguientes métodos.

Medición de la fuerza de adherencia

La composición adhesiva fue aplicada a las muestras en la dirección transversal. La fuerza de adherencia de cada muestra fue medida usando una máquina de ensayos tensiles (nombre de comercio: Strogaph M-type; fabricado por Toyo Seiki Seisakusho). Las condiciones de medición fueron las siguientes.

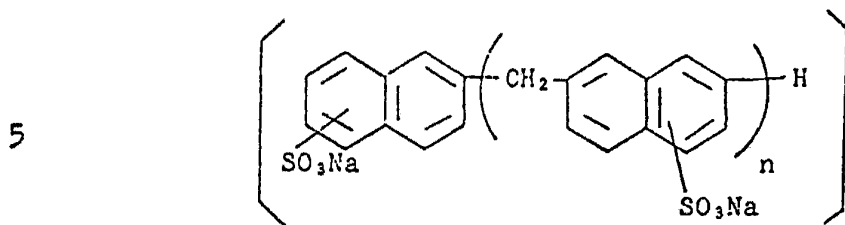
Carga:	1 kg.
Velocidad de tracción:	150 mm/min.
Detector de carga:	Convertidor de carga del tipo de calibre U
Registrador:	200 mm/min. en velocidad de alimentación

Separabilidad:

La separabilidad se inscribió al régimen siguiente: ninguna adherencia entre C_1-A_1 : 100; fácilmente separable, aunque adhiriéndose ligeramente: 80; adherencia y difícilmente separable: 60; completamente adherido y no separable (es decir, imposible de separar entre C_1-A_1): 0.

EJEMPLO 1

Cada uno de los siguientes condensados de sodio naftalenosulfonato-formaldehído, mostrados abajo.



se disolvieron en agua para preparar una solución al 30%, cuyas so-
luciones después se usaron como una composición adhesiva. La fuerza
adhesiva entre A₁-B₁, B₁-B₁ y B₁-C₁ fue medida para obtener los re-
sultados mostrados en la tabla 1.

TABLA 1

<u>Evaluación</u>	<u>Adhesivo 1</u> (n = 3 ~ 4)	<u>Adhesivo 2</u> (n = 5 ~ 6)	<u>Adhesivo 3</u> (n = 9 ~ 11)
15 <u>Fuerza de adherencia</u>			
Entre A ₁ -B ₁	45	58	65
Entre B ₁ -B ₁	65	88	72
20 Entre B ₁ -C ₁	83	110	81
Separabilidad	100	100	100

EJEMPLO 2

26 partes de un condensado de sodio naftalenosulfonato-formaldehído, (n = 4 ~ 5), 3 partes de goma laca y 0,5 partes de monoeta-
nolamina se disolvieron en 71,5 partes de agua para preparar una com-
posición adhesiva.

EJEMPLO 3

15 partes del mismo condensado usado en el Ejemplo 2, y 3 partes de la sal de sodio de carboximetil celulosa, se disolvieron en
30 82 partes de agua para obtener una composición adhesiva.

EJEMPLO 4

15 partes de condensado de sodio metilnaftalenosulfonato-formaldehido, según se describe en el Ejemplo 2, y 3 partes de polivinil alcohol (grado de saponificación: 88%; grado medio de polimerización: 500) se disolvieron en 90 partes de agua caliente (65°C) y se enfriaron a temperatura ambiente. Así se obtuvo una composición adhesiva.

Los resultados obtenidos usando la composición adhesiva en los ejemplos 2 a 4, se ilustran en la tabla 2.

10

TABLA 2

<u>Ejemplo</u>	<u>Fuerza de adherencia</u>			<u>Separabilidad</u>
	<u>Entre A₁-B₁</u>	<u>Entre B₁-B₁</u>	<u>Entre B₁-C₁</u>	
2	90	127	84	100
15 3	213	324	190	100
4	177	228	152	100

Como resulta claro de lo expuesto en la tabla 2, el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehido, fue excelente como un adhesivo para separar en abanico cada juego de hojas. En particular, está claro que el compuesto posee adecuadas propiedades de separabilidad.

20

Los efectos del presente invento fueron ulteriormente confirmados usando los siguientes papeles: A₂, B₂ y C₂.

Preparación del papel A₂

10 partes de gelatina de piel de cerdo, elaborada con ácido, y 10 partes de goma arábiga, se disolvieron en 400 partes de agua caliente a 40°C y se añadieron a ello 0,2 partes de aceite rojo de Turquía como un emulgante. Después se emulsionaron y dispersaron dentro de ello 40 partes de un aceite formador de color, habiéndose preparado el aceite formador de color disolviendo 2% de lactona violeta cristal en un aceite, comprendiendo 4 partes de isopropilnafta

30

leno y 1 parte de aceite de lámpara. Se interrumpió la emulgación cuando el tamaño de las gotitas de aceite llegó a tener un promedio de 5μ . A esto se añadió agua a 40°C para llegar al total de 900 partes, continuando la agitación. En esta ocasión se cuidó que
5 la temperatura de la solución no llegase a tener menos de 40°C . Después se añadió a ello 10% de ácido acético para ajustar el pH de la solución a $4,0 \sim 4,2$ ocurriendo coacervación. Se continuó la agitación y, después de 20 minutos, la solución fue enfriada exteriormente con agua de hielo para gelizar la película de coacervado,
10 depositada alrededor de las gotitas de aceite. Cuando la temperatura de la solución alcanzó 20°C , se añadieron a ello 7 partes de una solución acuosa al 37% de formaldehído. A 10°C se añadieron 40 partes de una solución acuosa al 7% de la sal de sodio de carboximetil celulosa, seguido de la adición a gotas a ello de una solución acuosa al 15% de hidróxido sódico para ajustar el pH a 9. En
15 este punto, la adición del hidróxido sódico se realizó con máximo cuidado. Entonces, el sistema fue calentado durante 20 minutos para incrementar la temperatura de la solución a 50°C agitando. Después se ajustó la temperatura a 30°C y las microcápsulas así preparadas fueron revestidas sobre un papel de 40 g/m^2 , en una cantidad de 6 g
20 en una base de sólidos/ m^2 , seguido de secado.

Con otros formadores de color fueron formadas muestras, de la misma manera que se ha descrito arriba.

Preparación de papel B₂

25 6 partes de una solución acuosa al 20% de hidróxido sódico fueron añadidas a 150 partes de agua. Entonces se añadieron a ello gradualmente 50 partes de arcilla activa. Después de agitar durante 30 minutos se añadieron 20 partes de un látex de estireno-butadieno (contenido de sólidos: 48% de peso; pH: 8,5; viscosidad: 250 cp; tamaño medio de grano: $0,16\mu$) y se mezcló uniformemente. Esta solu
30

ción revestidora fue revestida sobre un papel de 40 g/m² en una cantidad de 8 g/m² (en una base de sólidos) y se secó, seguido de calandrado. Entonces, la misma solución revestidora de microcápsulas, que se había utilizado en la preparación del papel A₂, fue re-
5 vestida sobre la cara opuesta del soporte en una cantidad de 6 g/m² (en una base de sólidos) seguido de secado.

Preparación del papel C₂

La misma solución de revelador de color (arcilla activa), usada en la preparación del papel B₂, fué revestida sobre un papel de
10 110 g/m² en una cantidad de 8 g/m² (sobre una base de sólidos) y se secó, seguido de calandrado.

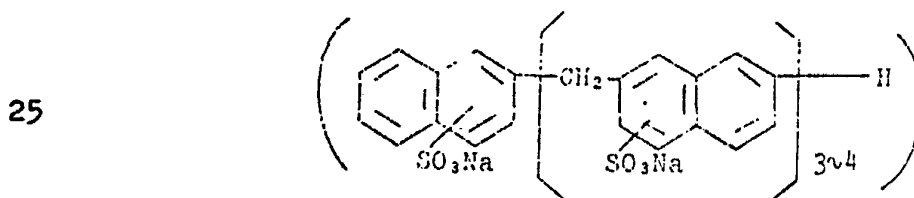
Método de ensayo

Los así obtenidos papeles A₂, B₂ y C₂ fueron superpuestos en el orden de A₂-B₂-B₂-C₂ para acumular 50 unidades de los mismos,
15 que entonces fueron cortados en piezas de 3 cm x 5 cm. Después se aplicó composición adhesiva a un lado cortado, en una cantidad de 5 g/100 cm², seguido de secado a temperatura ambiente.

Se examinaron la fuerza de adherencia y la separabilidad una hora después de secar, de acuerdo con los métodos anteriormente
20 descrito.

EJEMPLO 5

Un condensado de naftalenosulfonato de sodio-formaldehído;



se disolvió en agua a 50° C. Después se añadió a ello un látex copolímero modificado de estireno-butadieno (contenido de sólidos:
30

49% de peso; pH: 6,8; viscosidad: 95 cp (25° C; tamaño de partícula: 0,1 - 0,15 μ) para preparar una composición adhesiva. La proporción del condensado con respecto al látex y la concentración de los sólidos en la composición se variaron como se ilustra en la siguiente tabla 3, para medir la fuerza de adherencia entre A_2-B_2 , B_2-B_2 y B_2-C_2 y separablemente entre C_2-A_2 . Los resultados así obtenidos se indican en la tabla 3.

TABLA 3

10	<u>Concentración de sólidos</u>	<u>Propiedad</u>	Cantidad de Látex (por peso) Basada en 1 parte de peso del condensado			
			<u>0.5</u>	<u>1.25</u>	<u>2.0</u>	<u>2.5</u>
	10%	Fuerza de Adherencia <u>Entre:</u>				
		A_2-B_2	97	120	330	313
		B_2-B_2	115	253	453	400
15		B_2-C_2	120	293	583	447
		<u>Separabilidad:</u>	100	100	100	100
	15%	Fuerza de Adherencia <u>Entre:</u>				
		A_2-B_2	153	367	297	390
20		B_2-B_2	240	373	410	477
		B_2-C_2	257	470	447	483
		<u>Separabilidad:</u>	100	100	100	100
	20%	Fuerza de Adherencia <u>Entre:</u>				
25		A_2-B_2	82	432	417	407
		B_2-B_2	90	537	540	547
		B_2-C_2	83	433	367	330
		<u>Separabilidad:</u>	100	100	100	100

EJEMPLO 6

30 El mismo condensado de naftalenosulfonato de sodio-formaldehido

que en el Ejemplo 5 fue disuelto en agua a 50°C (en la siguiente concentración) para preparar composiciones adhesivas. Los resultados obtenidos se indican en la tabla 4.

TABLA 4

5	Fuerza de Adherencia Entre: _____	Concentración de condensado			
		8 peso %	12 peso %	15 peso %	20 peso %
	A ₂ -B ₂	2	5	10	21
	B ₂ -B ₂	3	5	10	22
	B ₂ -C ₂	2	5	9	19
10	Separabilidad	100	100	100	100

EJEMPLO COMPARATIVO 1

Al mismo látex que en el Ejemplo 5, se añadió agua para preparar composiciones adhesivas, teniendo las siguientes concentraciones de látex. Los resultados obtenidos se indican en la tabla 5.

15 TABLA 5

15	Fuerza de Adherencia Entre: _____	Concentración de Látex			
		2 peso %	6 peso %	10 peso %	14 peso %
	A ₂ -B ₂	98	217	266	287
	B ₂ -B ₂	90	260	313	325
20	B ₂ -C ₂	69	280	327	332
	Separabilidad	60	0	0	0

25 Como resulta claro de los resultados en las tablas 3, 5, la composición adhesiva de esta composición del presente invento, comprendiendo el condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído y el látex, fue mejorada, tanto en fuerza adhesiva, como en separabilidad (siendo su grado claramente el de un efecto sinérgico) mientras que el uso independiente del condensado de ácido naftalenosulfónico-formaldehído, procuró fuerza adhesiva más pobre, aunque la separabilidad fue buena y el uso independiente del látex procuró separabilidad
30 muy mala.

EJEMPLO 7

Fueron preparadas composiciones adhesivas de la misma manera que en el Ejemplo 5, excepto por usar un látex copolímero de metilmetacrilato modificado-etil acrilato (contenido de sólidos: 45%; pH: 3,0; viscosidad: 600 cp; tamaño medio de partícula: 0,1 ~ 0,15) como el látex. Los resultados obtenidos se indican en la tabla 6.

TABLA 6

Concentración		Cantidad de Látex (por peso) Basada en 1 Parte del Condensado				
		<u>0.5</u>	<u>1.25</u>	<u>2.0</u>	<u>2.5</u>	
10	<u>Fuerza de Adherencia Entre:</u>					
	10%	A ₂ -B ₂	183	290	385	420
		B ₂ -B ₂	177	275	380	427
		B ₂ -C ₂	125	188	260	280
15	Separabilidad	100	100	100	100	
15	<u>Fuerza de Adherencia Entre:</u>					
	15%	A ₂ -B ₂	270	373	477	423
		B ₂ -B ₂	253	360	340	377
		B ₂ -C ₂	182	273	280	280
20	Separabilidad	100	100	100	100	
20	<u>Fuerza de Adherencia Entre:</u>					
	20%	A ₂ -B ₂	272	378	397	293
		B ₂ -B ₂	257	278	303	253
		B ₂ -C ₂	203	213	248	192
25	Separabilidad	100	100	80	80	

EJEMPLO COMPARATIVO 2

Al mismo látex copolímero de metilmetacrilato modificado-etilacrilato, que en el Ejemplo 7, se añadió agua para preparar compo-

ciones adhesivas teniendo las siguientes concentraciones. Los resultados obtenidos se ilustran en la tabla 7.

TABLA 7

Fuerza de Adherencia Entre:	Concentración de Latex			
	2 peso %	6 peso %	10 peso %	14 peso %
A - B	53	152	237	273
B - B	48	144	240	268
B - C	41	120	202	270
Separabilidad	No más que 60	0	0	0

10

La comparación de los resultados mostrados en las tablas 5, 3 y 6, revela que el uso independiente del látex procuró separabilidad pobre, aunque la fuerza de adherencia era bastante alta y, por lo tanto, es poco práctica como composición adhesiva para separar en abanico hojas de capas múltiples. En contraste se observa que la mezcla de condensado de naftalenosulfonato sódico-formaldehído, y la emulsión de material de alto peso molecular (látex) fué eficaz como una composición adhesiva para separar en abanico hojas de capas múltiples.

15

EJEMPLO 8

20

Condensado de naftalenosulfonato de sodio-formaldehído según se describe en el Ejemplo 5 ($n = 4 \sim 5$) se disolvió en agua caliente. Entonces se añadió a ello emulsión de éster estireno-acrílico (concentración de sólidos: 30% de peso; pH: 7; tamaño medio de partícula: $0,2 \mu$; viscosidad: 50 cp (25°C)) para preparar composiciones adhesivas. La proporción del condensado de naftalenosulfonato de sodio-formaldehído respecto a la emulsión de estireno-éster acrílico fué de 1:2 y la concentración fue de 20% de peso.

25

EJEMPLO 9

Condensado de naftalenosulfonato de sodio-formaldehído según se describe en el Ejemplo 8, fue disuelto en agua caliente a 50°C a

30

12.5% de peso para preparar una composición adhesiva.

EJEMPLO COMPARATIVO 3

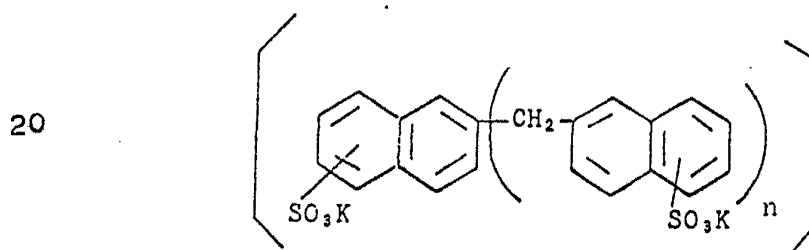
Una emulsión de estireno-éster acrílico (concentración de sólidos: 30% de peso) fue diluida a una concentración de 7,5% para preparar una composición adhesiva.

EJEMPLO 10

10 partes del mismo condensado que en el Ejemplo 2, fueron disueltas en 80 partes de agua y después se añadieron a ello 10 partes de un látex copolímero de estireno modificado-butadieno (contenido de sólidos: 49%), seguido de mezclado. Así se obtuvo una composición adhesiva.

EJEMPLO 11

15 partes de una mezcla de condensado de naftalenosulfonato de potasio-formaldehído ($n \leq 3$; 15% de peso; $n = 4 \sim 6$: 50% de peso; $n = 6 \sim 12$: 35% de peso);



25 y 0,5 partes de un agente superficie activo catiónico se disolvieron en 85 partes de agua y se añadieron a ello para mezclar 10 partes de látex copolímero modificado de metil metacrilato-etil acrilato (contenido de sólidos: 45%; pH: 3,0). Así se obtuvo una composición adhesiva.

30 Los resultados de los Ejemplos 8 a 11, y del Ejemplo comparativo 3 se ilustran en la tabla 8.

TAELA 8

Fuerza de Adherencia Entre *	Ejemplo 8	Ejemplo 10	Ejemplo 11	Ejemplo 9	Ejemplo Comparativo 3
A-B	356	386	290	6	190
B-B	340	435	321	5	200
B-C	297	363	263	5	160
Separabilidad	100	100	100	100	0

* Los papeles A₁, B₁ y C₁ fueron empleados en la evaluación de los Ejemplos 10 y 11, y se emplearon A₂, B₂ y C₂ en la evaluación de los Ejemplos 8 y 9 y Ejemplo Comparativo 3.

Una mezcla del condensado de naftalenosulfonato sódico-formaldehído y la emulsión de material de alto peso molecular, es una composición adhesiva bastante superior en fuerza adhesiva y separabilidad a su uso independiente.

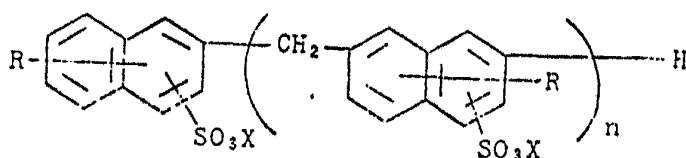
Mientras que el invento ha sido descrito en detalle y con referencia a sus ejecuciones específicas, resultará evidente para alguien experto en la materia que pueden introducirse en el mismo varios cambios y modificaciones sin apartarse de su idea y alcance.

N O T A

1ª.- Mejoras en la obtención de composiciones adhesivas para la separación de cada unidad de hojas de capas múltiples, caracterizadas porque la composición adhesiva contiene condensado de naftalenosulfonato-formaldehído.

2ª.- Mejoras según la reivindicación 1ª, caracterizadas porque dicha composición adhesiva contiene adicionalmente una emulsión o un material de alto peso molecular.

3ª.- Mejoras según la reivindicación 1ª, caracterizadas porque dicho condensado de naftalenosulfonato-formaldehído tiene la fórmula general



en que los R, que pueden ser iguales o diferentes, representan cada uno, un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo, en que una pluralidad de los R pueden estar presentes en el anillo de naftaleno; X representa un átomo de hidrógeno, un átomo de metal de álcali o un grupo de amonio; y n representa un número entero.

4ª.- Mejoras según la reivindicación 1ª, caracterizadas porque el grupo alquilo de dicho R tiene de 1 a 18 átomos de carbono; X representa un átomo de sodio, un átomo de potasio o un grupo de amonio; y n representa de 1 a 13.

5ª.- Mejoras según la reivindicación 4ª, caracterizadas porque dicho grupo alquilo para dicho R tiene de 1 a 4 átomos de carbono; X representa un átomo de sodio o un átomo de potasio; y n representa un número entero de 1 a 5.

6ª.- Mejoras según la reivindicación 1ª, caracterizadas porque dicho condensado de naftalenosulfonato-formaldehído está presente en dicha composición en una proporción de alrededor de 5 a 40% de peso.

7ª.- Mejoras según la reivindicación 1ª, caracterizadas porque dicha composición adhesiva incluye adicionalmente por lo menos un aglutinante soluble en agua y un agente superficie activo catiónico, aniónico o no iónico.

8ª.- Mejoras según la reivindicación 2ª, caracterizadas porque dicha emulsión de un material de alto peso molecular contiene alrededor de 10% a 70% de peso de sólidos, tiene una viscosidad de alrededor de 0,5 a 1000 poise y teniendo el material de alto peso molecular un tamaño de partícula de alrededor de 0,1 a 5 micras.

9ª.- Mejoras según la reivindicación 2ª, caracterizadas porque dicha emulsión de un material de alto peso molecular es un látex de goma de estireno-butadieno, un látex de goma de butadieno-acrilonitrilo, un látex de goma de cloropreno; un látex de acetato de vinilo, un látex acrílico o un látex de cloruro de vinilo.

10ª.- Mejoras según la reivindicación 2ª, caracterizadas porque dicho condensado de naftalenosulfonato-formaldehído está presente en una proporción de alrededor de 5 a 30% de peso y la emulsión del material de alto peso molecular está presente en una proporción de alrededor de 2 a 30% de peso en base de sólidos.

11ª.- Mejoras según la reivindicación 2ª, caracterizadas porque dicha composición incluye por lo menos un aglutinante soluble en agua y un agente superficie activo catiónico, aniónico o no iónico.

12ª.- Mejoras según las reivindicaciones precedentes para separar hojas de capas múltiples en sus unidades, caracterizadas porque la composición adhesiva de la reivindicación 1ª se aplica a un lado de una pila de hojas de capas múltiples y se separa cada unidad de dichas hojas.

13ª.- Mejoras según las reivindicaciones precedentes, caracterizadas porque se aplica la composición adhesiva de la reivindicación 2ª a un lado de una pila de hojas de capas múltiples y se separa cada unidad de dichas hojas.

14ª.- Por último se reivindica como objeto sobre el que ha de recaer la presente Patente de Invención que por veinte años se solicita registrar para España, - - - - -

p o r

" MEJORAS EN LA OBTENCION DE COMPOSICIONES ADHESIVAS PARA LA SEPARACION DE CADA UNIDAD DE HOJAS DE CAPAS MULTIPLES "

25 Todo conforme queda expresado en la presente Memoria Descriptiva que consta de veintinueve hojas foliadas y escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,
P.A.

