



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 696 05 765 T3** 2004.09.30

(12) **Übersetzung der geänderten europäischen Patentschrift**

(97) **EP 0 794 202 B2**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **696 05 765.4**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **96 103 478.2**

(96) Europäischer Anmeldetag: **06.03.1996**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **10.09.1997**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **22.12.1999**

(97) Veröffentlichungstag

des geänderten Patents beim EPA: **31.03.2004**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **30.09.2004**

(51) Int Cl.<sup>7</sup>: **C08F 240/00**

**C08L 57/02, C09J 157/02**

(73) Patentinhaber:

**Eastman Chemical Resins, Inc., Kingsport, Tenn.,  
US**

(74) Vertreter:

**WUESTHOFF & WUESTHOFF Patent- und  
Rechtsanwälte, 81541 München**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**BE, DE, ES, FR, GB, IT, NL, SE**

(72) Erfinder:

**Lenselink, Bert, 4341 LN Arnhemuiden, NL; Donker,  
Chretien P.L.C., 4451 RA Heinkenszand, NL;  
Theelen, Michel Hendrikus, 4337 MS Middelburg,  
NL**

(54) Bezeichnung: **Aliphatische Harze auf Petroleumbasis und druckempfindliche Schmelzklebstoffe, die diese enthalten.**

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

## Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft aliphatische Harze, die sich zum Klebrigmachen eignen und in denen der Anteil an cyclischen, quer vernetzten oder vernetzten Strukturen in der Weise erhöht und gesteuert ist, daß sich eine günstigere Beziehung zwischen dem Ring-Kugel-Erweichungspunkt (R&B) und dem Molekulargewicht sowie eine bessere Verträglichkeit mit aromatischen Lösungsmitteln ergibt. Diese Harze weisen ein verbessertes Klebeverhalten in Schmelzhaftkleberzusammensetzungen auf.

### Hintergrund der Erfindung

[0002] Schmelzhaftkleber enthalten üblicherweise ein Gemisch aus einem Polymeren oder Copolymeren (nachstehend wird der Ausdruck "Polymeres" sowohl für Homopolymere als auch für Copolymere verwendet), vorzugsweise ein Blockcopolymeres, ein klebrig machendes Petroleumharz und gegebenenfalls weitere Komponenten, z. B. ein Extenderöl (auch als Verarbeitungsöl bezeichnet), Füllstoffe und einige Additive, wie Antioxidationsmittel oder farbgebende Mittel.

[0003] Beim vorstehenden Polymeren handelt es sich häufig um ein S-I-S-Blockcopolymeres (Styrol-Isopren-Styrol-Blockcopolymeres) mit Polystyrol- und Polyisopren-Blocksegmenten. In einem derartigen Fall kann die Klebstoffzusammensetzung zusätzlich einige Polystyrol-Polyisopren-Diblöcke enthalten.

[0004] Das Harz auf Petroleumbasis übt einen wichtigen Einfluß auf die physikochemischen Eigenschaften des Klebstoffes aus, z. B. auf dessen Schmelzviskosität, Verträglichkeit mit aromatischen Lösungsmitteln, Schereigenschaften und Klebrigkeitseigenschaften. Um das optimale Profil in bezug auf eine geringe Schmelzviskosität, gute Verträglichkeit mit organischen Lösungsmitteln, hohe Klebrigkeit und Schereigenschaften ohne Einbußen in bezug auf das Hochtemperatur-Scherverhalten zu erreichen, enthalten herkömmliche klebrig machende Harze auf Petroleumbasis einen bestimmten Anteil an aromatischen Modifikationen.

[0005] Herkömmliche Harze ohne eine aromatische Modifikation erreichen nicht in zufriedenstellendem Maße die vorstehenden Eigenschaften.

[0006] Die nachstehend aufgeführten Patente und/oder Patentanmeldungen lassen sich als einschlägige Druckschriften erwähnen:

[0007] US-4 411 954 beschreibt die Verwendung von aliphatischen Harzen, die gemäß US-3 577 398 hergestellt worden sind, in Schmelzhaftklebern auf S-I-S-Basis.

[0008] EP-0 447 855 beschreibt die Verwendung von aliphatischen und aromatisch modifizierten aliphatischen Harzen in Schmelzhaftklebern auf S-I-S-Basis. Die verwendeten Anteile der aromatischen Modifikationen liegen zwischen 11 und 15%. Styrol wird als aromatisches Monomeres erwähnt.

[0009] US-4 623 698 beschreibt die Verwendung von aliphatischen und aromatisch modifizierten aliphatischen Harzen mit Erweichungspunkten von 0 bis 80°C als Klebrigmacher in SB-Polymeren.

[0010] US-4 078 132 beschreibt die Herstellung von aliphatischen und aromatisch modifizierten aliphatischen Harzen aus unter Wärmeeinwirkung getränkten Piperylenströmen. Von Isobutylen und Isoamylen wird angegeben, daß sie als Kettenübertragungsmittel wirken. Die Verwendung von  $\alpha$ -Methylstyrol (AMS) als aromatisches Modifikationsmittel wird beschrieben. Es werden einige Anwendungsmöglichkeiten unter Verwendung von Harzen mit Erweichungspunkten zwischen 70 und 85°C beschrieben.

[0011] WO-95/16755 beschreibt eine Schmelzkleberzubereitung unter Verwendung eines S-I-S-Polymeren, eines aromatisch modifizierten aliphatischen Harzes und eines Extenderöls. Die aromatische Modifikation ergibt Schmelzhaftkleberzubereitungen mit geringer Viskosität und erhöhten Klebrigkeitseigenschaften.

[0012] Aromatisch modifizierte, klebrig machende Harze sind jedoch aus einer Anzahl von Gründen nachteilig. Erstens sind Aromaten relativ teuer, während die Verwendung von Nichtaromaten das Harz billiger machen würde. Zweitens sind sie für Hydrierungs-, Hydrotreating- und Abschreckverfahren zur Verbesserung der Harzfarbe, bevor sie für irgendeinen Anwendungszweck eingesetzt werden, weniger gut geeignet. Drittens führen aromatisch modifizierte aliphatische Harze zu einem geringeren Scherverhalten bei höheren Temperaturen für Schmelzhaftkleberanwendungen. Es ist daher wünschenswert und stellt eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung dar, ein billigeres Harz auf Petroleumbasis bereitzustellen, das ähnliche oder noch bessere Anwendungseigenschaften als aromatisch modifizierte Harze aufweist.

[0013] Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist es, aliphatische Harze bereitzustellen, die sich in Schmelzhaftkleberzusammensetzungen eignen und bei denen eine niedere Schmelzviskosität mit hervorragenden Klebrigkeits- und Schereigenschaften vereinigt ist. Ferner sollen Schmelzhaftkleber, die derartige Harze enthalten, bereitgestellt werden.

[0014] Erfindungsgemäß wurde festgestellt, daß aliphatische Harze mit einem erhöhten Anteil an cyclischen Strukturen die gewünschten Ring-Kugel-Erweichungspunkte und Molekulargewichte aufwiesen und zu einer niedrigviskosen Schmelzhaftkleberzusammensetzung führten, die hervorragende Klebrigkeits- und Schereigenschaften zeigten, ohne daß ihr Hochtemperatur-Scherverhalten verloren ging. Die erfindungsgemäßen Harze unterscheiden sich von aliphatischen Harzen des Stands der Technik insbesondere insofern, als sie ei-

nen höheren Anteil an cyclischen Strukturen aufweisen. Der Ausdruck "cyclische Struktur" ist als ein beliebiges Strukturmerkmal definiert, das dazu dient, den Anteil der Quervernetzung oder der Netzwerkstruktur im Harz zu erhöhen. Diese Typen von strukturellen Merkmalen können sich (ohne Beschränkung hierauf) aufgrund von folgenden Reaktionen ergeben: "Zurückbeißen" der wachsenden Polymerkette zur Einverleibung von cyclischen Strukturen entlang eines Gerüsts und/oder an der Kettentermination, Dimerisierung von Monomeren unter Bildung von reaktiven cyclischen Strukturen, die in die Polymerketten einverleibt werden können, intramolekulare Verknüpfung von seitenständigen Gruppen mit einer Polymerkette und Vernetzung zwischen kurzen Polymerketten unter Bildung von hochvernetzten Strukturen. Dies ist auf diesem Anwendungsgebiet neu und kann durch Bestimmung einer Anzahl von physikochemischen Eigenschaften, die einen Hinweis auf cyclische Strukturen darstellen, bestätigt werden.

#### Zusammenfassende Darstellung der Erfindung

[0015] Im Hinblick auf den vorliegenden Sachverhalt stellt die Erfindung ein aliphatisches Harz auf Petroleumbasis bereit, das folgende Eigenschaften aufweist:

- a) einen Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C,
- b) ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts ( $M_w$ ) von 1000 bis 2600 Dalton, ein Z-Mittel des Molekulargewichts ( $M_z$ ) von 1900 bis 5000 Dalton und einen  $M_w/M_n$ -Wert unter 2,0,
- c) einen Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch  $^1\text{H-NMR}$  bestimmte Protonen,
- d) einen Misch-Methylcyclohexan-Anilin-Trübungspunkt (MMAP) von 90°C oder weniger.

[0016] Gemäß einer weiteren Ausführungsform wird erfindungsgemäß eine Schmelzhaftkleberzusammensetzung bereitgestellt, die folgendes umfaßt:

- (i) 100 Gewichtsteile eines Styrol-Isopren-Styrol (S-I-S)-Kautschuks,
- (ii) 70 bis 200 Gewichtsteile eines aliphatischen Harzes auf Petroleumbasis, das folgende Eigenschaften aufweist:
  - einen Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C,
  - ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts ( $M_w$ ) von 1000 bis 2600 Dalton, ein Z-Mittel des Molekulargewichts ( $M_z$ ) von 1900 bis 5000 Dalton und einen  $M_w/M_n$ -Wert unter 2,0,
  - einen Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch  $^1\text{H-NMR}$  bestimmte Protonen und
  - einen Misch-Methylcyclohexan-Anilin-Trübungspunkt (MMAP) von 90°C oder weniger.
- (iii) 0–70 Gewichtsteile eines Extenderöls,

dadurch gekennzeichnet, daß die Zusammensetzung eine maximale Viskosität von 100000 mPas und vorzugsweise von 80000 mPas, gemessen gemäß dem ASTM-Verfahren D3236 bei 175°C mit einem Brookfield-Viskositätsmeßgerät, aufweist.

[0017] Ferner offenbart die vorliegende Beschreibung ein Verfahren zur Steuerung des Ring-Kugel-Erweichungspunkts und des Molekulargewichts einer aliphatischen Harzzusammensetzung wobei das Verfahren dadurch gekennzeichnet ist, daß der Anteil an cyclischen Strukturen in den Harzen erhöht ist. Diese Erhöhung kann vorzugsweise erreicht werden, indem man einen oder mehrere der folgenden Parameter bei der Polymerisationsreaktion variiert:

- (i) Reaktionstemperatur,
- (ii) Menge an Katalysator,
- (iii) Menge an Kettenübertragungsmittel und
- (iv) Menge an cyclodiolefinischen Komponenten im Einsatzmaterial.

[0018] Weitere Aufgaben und Merkmale der Erfindung ergeben sich aus der folgenden ausführlichen Beschreibung und den beigefügten Ansprüchen.

#### Ausführliche Beschreibung der Erfindung

[0019] Beim erfindungsgemäß verwendeten Harz auf Petroleumbasis handelt es sich vorzugsweise um das Friedel-Crafts-Polymerisationsprodukt eines gecrackten Petroleum Einsatzmaterials mit einem Gehalt an C5-Olefinen und Diolefinen oder einem Gemisch aus C5- und C6-Olefinen und -Diolefinen, die mit einem als Kettenübertragungsmittel verwendeten C4- oder C5-Olefin oder mit Dimeren davon copolymerisiert sind. Insbesondere enthält das Petroleum Einsatzmaterial einige cyclische Diolefine, wie Cyclopentadien, Methylcyclopentadien, Dicyclopentadien und/oder Dimerisationsprodukte davon und die aktiven C5- und C6-Komponenten-

ten.

[0020] Die erwünschte Zunahme des Anteils an cyclischen Strukturen in den aliphatischen Harzen kann beispielsweise erreicht werden, indem man die Reaktionstemperatur und/oder den Anteil des Katalysators erhöht und einen an Cyclodiolefinen reichen Einsatzmaterialstrom verwendet. Die Erhöhung der Menge an cyclischen Strukturen im Harz wurde durch Auffinden eines höheren Ring-Kugel-Erweichungspunkts und/oder eines niedrigeren Molekulargewichts sowie durch eine bessere Verträglichkeit mit aromatischen Lösungsmitteln (geringerer MMAP-Wert) bestätigt. Die erfindungsgemäßen klebrig machenden Harze führen zu einer geringeren Schmelzviskosität der Schmelzzusammensetzungen, denen sie einverleibt werden. Ferner verleihen sie diesen Schmelzzusammensetzungen hervorragende Klebrigkeits- und Schereigenschaften.

[0021] Es ist bekannt, daß während der Friedel-Crafts-Polymerisation von Piperylen und/oder Isopren neben einer 1,2- und einer 1,4-Addition auch ein Teil der Monomeren vor der Polymerisation cyclodimerisiert wird oder sogar nach der Polymerisation eine Cyclisierung eintritt.

[0022] Das Auffinden eines höheren Ring-Kugel-Erweichungspunkts zusammen mit einem ähnlichen oder sogar geringeren Molekulargewicht oder eines geringeren Molekulargewichts bei einem ähnlichen oder sogar höheren Ring-Kugel-Erweichungspunkt ist ein Hinweis auf einen höheren Anteil an cyclischen Strukturen im Harz. Es wurde von den Erfindern festgestellt, daß der Anteil an cyclischen Strukturen beeinflußt werden kann, indem man die Polymerisationsbedingungen, wie die Katalysatorkonzentration, die Reaktionstemperatur, die Menge an Kettenübertragungsmittel und die Einsatzmaterialzusammensetzung, variiert.

[0023] In der besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung umfaßt das aliphatische klebrig machende Petroleumharz ein durch Friedel-Crafts-Polymerisation hergestelltes Petroleummaterial mit einem Gehalt an C5- und C6-Olefinen und/oder -Diolefinen und vorzugsweise Cycloolefinen und Cyclodiolefinen, wie Cyclopentadien, Methylcyclopentadien und deren Dimere, die mit C4- oder C5-Olefinen und/oder -Dimeren als Kettenübertragungsmittel copolymerisiert sind. Die endgültigen Klebstoffeigenschaften derartiger Harze werden durch Steuerung des Anteils der cyclischen Strukturen unter Variation der Reaktionstemperatur, der Menge an Katalysator, der Menge an Kettenübertragungsmittel und der Einsatzmaterialzusammensetzung optimiert. Somit ist es möglich, während des Polymerisationsvorgangs Harze zu erhalten, die einen erwünschten Erweichungspunkt und eine erwünschte Molekulargewichtsverteilung aufweisen. Ein höherer Anteil an cyclischen Strukturen bedeutet eine steifere Struktur, die durch das Feststellen eines höheren Ring-Kugel-Erweichungspunkts zusammen mit einem ähnlichen oder sogar geringeren Molekulargewicht oder durch das Feststellen eines geringeren Molekulargewichts bei einem ähnlichen oder sogar höheren Ring-Kugel-Erweichungspunkt, verglichen mit einem Harz mit einem geringeren Anteil an cyclischen Strukturen, bestätigt wird. Ferner wurde festgestellt, daß derartige Harze eine bessere Verträglichkeit in aromatischen Lösungsmitteln aufweisen, wie aus dem niedrigeren MMAP-Trübungspunkt ersichtlich ist. Dies war nicht auf eine signifikante Einverleibung von aromatischen Komponenten zurückzuführen, da die Protonen-NMR-Analysen keine Unterschiede zwischen regulären aliphatischen Harzen und den erfindungsgemäß hergestellten Harzen zeigten.

[0024] Die fertigen Harze der Erfindung weisen die folgenden Eigenschaften auf:

- a) einen Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C,
- b) einen Mw-Wert von 1000 bis 2600 Dalton, ein Z-Mittel des Molekulargewichts (Mz) von 1900 bis 5000 Dalton und einen Mw/Mn-Wert unter 2,0,
- c) einen Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch <sup>1</sup>H-NMR bestimmte Protonen,
- d) einen MMAP-Trübungspunkt von 90°C oder weniger.

[0025] Diese polymerisierten Harze können als Klebrigmacher in Schmelzhaftkleberzusammensetzungen verwendet werden, die zusätzlich ein Polymeres und gegebenenfalls ein Extenderöl und andere Hilfsmittel enthalten. Eine bevorzugte Schmelzhaftkleberzusammensetzung der Erfindung umfaßt ein Gemisch aus folgenden Bestandteilen:

- (i) 100 Gewichtsteile eines Styrol-Isopren-Styrols (S-I-S)-Blockcopolymeren, wie Kraton D 1107, Kraton D KX 601 Cs, Kraton D 1114 und Vector 4111, die etwa 10 bis 30 Gewichtsteile Styrol enthalten, und
- (ii) etwa 70 bis 200 Gewichtsteile pro 100 Teile des Polymeren eines aliphatischen Harzes auf Petroleumbasis mit folgenden Eigenschaften:
  - a) einem Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C
  - b) einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts (Mw) von 1000 bis 2600 Dalton, einem Z-Mittel des Molekulargewichts (Mz) von 1900 bis 5000 Dalton und einen Mw/Mn-Wert unter 2,0,
  - c) einem Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch <sup>1</sup>H-NMR bestimmte Protonen.

In dieser Ausführungsform hat das zuzusetzende, klebrig machende Petroleumharz (ii) einen MMAP-Wert von 90°C oder weniger.

- (iii) Das Gemisch kann auch ein Extenderöl in einem Anteil von 0 bis 70 Gewichtsteilen pro 100 Gewichts-

teile des Polymeren enthalten, wie Shellflex 451 FC.

[0026] Die vorerwähnte bevorzugte Schmelzzusammensetzung weist eine Schmelzviskosität bei 175°C von weniger als 100000 und vorzugsweise von weniger als 80000 mPas, gemessen gemäß ASTM-D3236 mit einem Brookfield-Viskositätsmeßgerät, auf. Die Verwendung des Harzes (ii) gemäß dieser Ausführungsform in einer derartigen Schmelzhaftkleberzusammensetzung führt zu einer geringeren Schmelzviskosität als bei Verwendung von bekannten aliphatischen Harzen, wie Piccotac 95E und Escorez 1310, zu einer Kugelroll-Klebrigkeit, die mit der von bekannten aliphatisch oder aromatisch modifizierten Harzen, wie Piccotac 95E oder Escorez 2203 oder Hercotac 1148 vergleichbar ist, und einer besseren Hochtemperatur-Scherfestigkeit als bei aromatisch modifizierten Harzen, wie Escorez 2203, Hercotac 1148 und Hercules RESIN A. Die vorstehenden handelsüblichen Harze, deren Handelsbezeichnungen angegeben sind, werden im experimentellen Teil (Materialien & Methoden) nachstehend ausführlicher beschrieben.

[0027] Üblicherweise werden die erfindungsgemäßen üblichen Harze durch eine Friedel-Crafts-Polymerisation hergestellt, bei der ein Gemisch eines gecrackten Petroleumseinsatzmaterials und eines Kettenübertragungsmittels in einem inerten Lösungsmittel mit 1,0 bis 8,0 Gewichts-% eines Katalysators, wie Aluminiumchlorid, Aluminiumbromid, Aluminiumfluorid, Bortrifluorid oder Lösungen, Aufschlammungen oder Komplexen davon behandelt wird, wobei man Reaktionstemperaturen von 0 bis 100°C anwendet.

[0028] Die fertigen Polymerisationseinsatzmaterialien enthalten normalerweise etwa 20 bis 60 und vorzugsweise 30 bis 50 Gew.-% eines Petroleumseinsatzmaterialstroms, 0 bis 20 Gew.-% eines Kettenübertragungsmittels und 40 bis 80 Gew.-% eines inerten Lösungsmittels, wie Toluol oder ein in der Anlage wiedergewonnenes Lösungsmittel. Ein geeignetes Polymerisationseinsatzmaterial enthält 30 bis 50 Gew.-% und vorzugsweise 35 bis 45 Gew.-% an polymerisierbaren Monomeren, so daß die letztendliche Ausbeute pro gesamtes Einsatzmaterial 30 bis 50 Gew.-% beträgt.

[0029] Die Petroleumseinsatzmaterialströme enthalten im allgemeinen ungesättigte Kohlenwasserstoffe, die aus C5- und C6-Olefinen und/oder -Diolefinen mit einem Siedebereich von 20 bis 100°C und vorzugsweise von 30 bis 70°C bestehen. Cyclopentadien und Methylcyclopentadien sind im allgemeinen durch Heißstränken in der C5/C6-olefinischen und -diolefinischen Fraktion bei Temperaturen von 100 bis 160°C und durch Fraktionieren der erhaltenen Dimeren durch Destillation entfernt worden. Es wurde jedoch festgestellt, daß Einsatzmaterialien mit einem Gehalt an cycloolefinischen und cyclodiolefinischen Komponenten, wie Cyclopentadien und Dicyclopentadien, zu cyclischen und steiferen Strukturen in den Harzen beitragen, was schließlich zu einem besseren Klebeverhalten in einer Schmelzhaftkleberzubereitung führt (vergl. Beispiel 3). Weitere cyclische Diene, die durch Codimerisation der cyclischen Diene mit linearen konjugierten C5-Dienen oder anderen reaktiven olefinischen Komponenten im Petroleumseinsatzmaterialstrom gebildet worden sind, können ebenfalls zu einem höheren Grad an cyclischen Strukturen im endgültigen Harz beitragen.

[0030] Nachstehend werden durchschnittliche Zusammensetzungen von zwei verwendeten Petroleumseinsatzmaterialströmen mit und ohne Cyclodiolefine aufgeführt:

	<b>ohne Cyclodiolefine</b>	<b>mit Cyclodiolefinen</b>
<b>Einsatzmaterial</b>	<b>A</b>	<b>B</b>
gesamte Olefine	13	11
gesamte Cycloolefine	17	14
gesamte Diolefine	65	55
gesamte Cyclodiolefine	<2	15

[0031] Zu Beispielen für Olefine gehören Isobutylen, 1-Penten, 2-Methyl-1-penten und trans- und cis-2-Penten.

[0032] Zu Beispielen für Cycloolefine gehören Cyclopenten und Cyclohexen.

[0033] Zu Beispielen für Diolefine gehören cis- und trans-Piperylen (1,3-Pentadien), 1,4-Pentadien, Isopren, 1,3-Hexadien und 1,4-Hexadien.

[0034] Beispiele für Cyclodiolefine sind Cyclopentadien, Dicyclopentadien, Methyl- und Ethylderivate von beiden Komponenten und Codimere des Cyclopentadiens und der Diolefine.

[0035] Eine handelsübliche Probe eines Petroleumseinsatzmaterials ohne jegliche Cyclodiolefine ist das Superpiperylenkonzentrat der Firma Shell (NL). Eine handelsübliche Probe für das bevorzugte Petroleumseinsatzmaterial mit einem Gehalt an den erwünschten Cyclodiolefinen ist das reguläre Piperylenkonzentrat der Firma

Shell (NL). Die cyclodiolefinischen Komponenten können selbstverständlich einem an Cyclodiolefinen armen Strom zugesetzt werden.

[0036] Ein besonders geeigneter Petroleumstrom enthält mindestens 70 Gew.-% polymerisierbare Monomere mit mindestens 50 Gew.-% Piperylen. Ferner enthält es weniger als 2 Gew.-% Isopren. Um eine möglichst niedere Schmelzviskosität der Schmelzhaftkleberzusammensetzung zu erreichen, enthält der Petroleumstrom mindestens 10 Gew.-% Cyclopenten und mindestens 10 Gew.-% und vorzugsweise mindestens 15 Gew.-% cyclodiolefinische Komponenten, wie Cyclopentadien und/oder Dicyclopentadien.

[0037] Als Kettenübertragungsmittel wird im allgemeinen Isobutylen, 2-Methyl-1-buten, 2-Methyl-2-buten oder deren dimere Oligomere zur Herstellung von Harzen mit einer niedrigeren und engeren Molekulargewichtsverteilung verwendet. Die Komponenten können in reiner Form oder in Verdünnung in einem inerten Lösungsmittel, wie Toluol oder nicht-reaktive C4- bis C6-Komponenten, eingesetzt werden. Ein Beispiel für einen derartigen Strom ist das Isobutylen-Raffinat 1 ex DSM. Isoamylen (2-Methyl-2-buten) ergibt als Kettenübertragungsmittel einen relativen Ring-Kugel-Erweichungspunkt bei einem ähnlichen Molekulargewicht wie andere Kettenübertragungsmittel. Aus Kostengründen ist es bevorzugt, Isobutylen in reiner oder in verdünnter Form zu verwenden. Eine Zugabe einer größeren Menge an Kettenübertragungsmittel verringert sowohl den Ring-Kugel-Erweichungspunkt als auch das Molekulargewicht.

[0038] Bei dem während der Polymerisation verwendeten Lösungsmittel handelt es sich um reines Toluol oder um in der Anlage wiedergewonnenes Toluol. Das in der Anlage wiedergewonnene Toluol wird bevorzugt, da der Einsatz dieses in der Anlage wiedergewonnenen Toluols mit einem Gehalt an nicht-umgesetzten Verbindungen, die aus dem Petroleumeinsatzmaterialstrom stammen, wie Cyclopentan, n-Pentan, Isopentan und Cyclohexan, zu einem höheren Ring-Kugel-Erweichungspunkt bei einem ähnlichen Molekulargewicht führt, verglichen mit der Verwendung von reinem Toluol.

[0039] Der Katalysator für die Polymerisation wird in einer Menge von 1,0 bis 8,0 Gew.-%, vorzugsweise von 3,0 bis 6,0 Gew.-% und insbesondere von 4,0 bis 5,0 Gew.-%, bezogen auf die Menge der polymerisierbaren Komponenten im Polymerisationseinsatzmaterial, verwendet. Es wurde erfindungsgemäß festgestellt, daß eine höhere Katalysatorkonzentration, gegebenenfalls in Kombination mit einer höheren Temperatur, das Molekulargewicht verringert, während der Harzerweichungspunkt konstant gehalten wird. Das erhaltene Harz weist in einer Schmelzhaftkleberzusammensetzung eine geringere Schmelzviskosität auf. Die Zunahme der Katalysatorkonzentration steigert auch die Verträglichkeit mit aromatischen Lösungsmitteln, was sich in einem niedrigeren MMAP-Trübungspunkt widerspiegelt (vergl. Beispiel 1). Der Katalysator kann unter beliebigen geeigneten Friedel-Crafts-Katalysatoren, wie Aluminiumtrichlorid, Aluminiumbromid, Aluminiumfluorid, Titantri- und -tetrachlorid, Zinntetrachlorid, Bortrifluorid oder Lösungen, Aufschlämmungen oder Komplexe davon, gewählt werden.

[0040] Üblicherweise liegen die Polymerisationstemperaturen zwischen 0 und 100°C, wobei aber erfindungsgemäß der Bereich von 50 bis 120°C bevorzugt ist. Es wurde festgestellt, daß eine höhere Reaktionstemperatur zu einer stärker cyclischen Struktur führte, was sich in einem geringeren Molekulargewicht bei konstant gehaltenem Erweichungspunkt des Harzes widerspiegelt. Auch hier bewirkte das erhaltene Harz eine niedrigere Schmelzviskosität in der Schmelzhaftkleberzusammensetzung zusammen mit hervorragenden Klebrigkeits- und Schereigenschaften (vergleiche Beispiel 2).

[0041] Die Polymerisation kann auf kontinuierliche Weise oder absatzweise durchgeführt werden. Die Reaktionszeit beträgt typischerweise 1,0 bis 4,0 Stunden und hängt unter anderem von der Reaktionstemperatur ab.

[0042] Nach der Polymerisation kann der restliche Katalysator beispielsweise durch Zugabe von und Extraktion mit Wasser entfernt werden.

[0043] Die auf diese Weise erhaltenen Polymer-Lösungsmittel-Gemische können zur Entfernung von nicht-umgesetzten Kohlenwasserstoffen, Lösungsmitteln und niedermolekularen Oligomeren abgestreift werden. Das endgültige Harz weist üblicherweise einen höheren Erweichungspunkt auf.

[0044] Die auf diese Weise erhaltenen Harze, die sich insbesondere zur Verwendung als erfindungsgemäße Klebrigmacher eignen, weisen folgende Eigenschaften auf:

- a) einen Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C, vorzugsweise 90 bis 100°C,
- b) einen Mn-Wert von 600 bis 1300 und vorzugsweise von 700 bis 1000 Dalton, einen Mw-Wert von 1000 bis 2600 und vorzugsweise unter 2000 Dalton, ein Z-Mittel des Molekulargewichts (Mz) von 1900 bis 5000 Dalton und vorzugsweise unter 4000 Dalton sowie einen Mw/Mn-Wert unter 2,0,
- c) einen Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch NMR bestimmte Protonen,
- d) einen MMAP-Trübungspunkt von 90°C oder weniger.

[0045] Insbesondere die letzte Angabe ist neu für ein aliphatisches Harz auf der Basis von Petroleumeinsatzmaterialströmen. Normalerweise beträgt der MMAP-Trübungspunkt von handelsüblichen, unmodifizierten, aliphatischen Harzen, auf der Basis von ähnlichen Petroleumeinsatzmaterialströmen, 90°C oder mehr, während niedrigere MMAP-Werte nur mit aromatisch modifizierten Harzen erhalten werden konnten. Dies wird durch die

folgende Tabelle erläutert:

	<b>R&amp;B (°C)</b>	<b>Mz (Dalton)</b>	<b>MMAp (°C)</b>	<b>Bemerkungen</b>
Escorez 2203	94	3200	88	aromatisch modifiziert
Escorez 1310	94	3000	96	aliphatisches Harz
Wingtack 95	99	2900	100	aliphatisches Harz
Piccotac® 95E	95	3400	95	aliphatisches Harz
Hercotac® 1148	96	4000	88	aromatisch modifiziert

[0046] Im Gegensatz hierzu wurde festgestellt, daß aufgrund der verbesserten Verträglichkeit der erfindungsgemäßen Harze der MMAp-Trübungspunkt als eine Funktion der Menge der cyclischen Strukturen abnahm.

[0047] Ein besonders bevorzugter Klebrigmacher zur Verwendung in einer Schmelzhaftkleberzusammensetzung weist die folgenden typischen Eigenschaften auf (vergleiche auch Beispiel 4):

Ring-Kugel-Erweichungspunkt (°C)	96
MMAp (°C)	86
aromatische Protonen (NMR)	0,7
Farbe, 50% in Toluol (Gardner)	6
Mn (Dalton)	830
Mw (Dalton)	1460
Mz (Dalton)	2800

[0048] Die Steuerung des Anteils an cyclischen Strukturen kann durchgeführt werden, indem man die Katalysatorkonzentration und die Reaktionstemperatur variiert. Ferner läßt sich der erwünschte Ring-Kugel-Erweichungspunkt, von dem ebenfalls erwartet wird, daß er vom Anteil an cyclischen Strukturen abhängt, durch die Menge des Kettenübertragungsmittels steuern. Typische Polymerisationsbedingungen für das vorerwähnte Harz sind nachstehend angegeben. Da der Anteil an cyclischen Komponenten im Einsatzmaterial auch den endgültigen Anteil an cyclischen Strukturen im Harz und somit die letztendliche Schmelzviskosität einer Schmelzhaftkleberzusammensetzung beeinflusst, wird auch eine bevorzugte Zusammensetzung angegeben.

Temperatur:	55°C
Katalysatorkonzentration:	4,0 Gew.-% der Gesamtmenge der polymerisierbaren Monomeren
Polymerisationseinsatzmaterial:	
Isobutylen*	8,7
Isoamylen*	2,7
trans-Piperylen*	13,4
cis-Piperylen*	8,1
Cyclopentadien*	1,0
Dicyclopentadien*	5,5
Cyclopenten	8,3
Toluol	32,5
cis-2-Penten	1,0
trans-2-Penten	1,5
Cyclopentan	7,4
andere C5-Produkte	9,9
gesamtes polymerisierbares Material(*)	39,4

[0049] Die erfindungsgemäßen Harze können mit S-I-S-Polymeren und Additiven vermischt werden, wodurch man eine Schmelzhaftkleberzusammensetzung mit einer niedrigen Schmelzviskosität bei gleichzeitiger hervorragender Beschaffenheit in bezug auf Klebrigkeit und Scherverhalten erhält. Eine derartige Schmelzhaftkleberzusammensetzung läßt sich in einer Reihe von Formen verwenden. Besonders bevorzugte Anwendungsformen sind Klebestreifen und Klebeetiketten.

[0050] Die Schmelzhaftkleberzusammensetzung besteht im allgemeinen aus einem S-I-S-Blockcopolymeren, einem klebrig machenden Harz auf Petroleumbasis gemäß den Angaben in dieser Erfindung und anderen Additiven, die aus dem Stand der Technik bekannt sind, wie Kohlenwasserstoff-Extenderöle, Antioxidationsmittel, farbgebende Mittel, Füllstoffe und dergl. Geeignete Extenderöle werden aus der Gruppe aromatische Öle, naphthenische Öle, paraffinische Öle oder Gemische davon ausgewählt.

[0051] Die Menge des in Kombination mit dem Blockcopolymeren verwendeten Petroleumharzes kann 70 bis 200 Gewichtsteile pro 100 Gewichtsteile des Blockcopolymeren betragen. Ein bevorzugter Bereich beträgt 90 bis 150 Gewichtsteile pro 100 Teile des Blockcopolymeren.

[0052] Sofern es eingesetzt wird, beträgt die Menge des zugesetzten Extenderöls bis zu 70 Gewichtsteilen pro 100 Gewichtsteile des Blockcopolymeren und insbesondere 5 bis 50 Gewichtsteile.

[0053] Die S-I-S-Blockcopolymeren können aus der Gruppe der Polymeren mit einem Gehalt an 0 bis 30 Gewichtsteilen Styrol und 0 bis 40 Gewichtsteilen Diblocken ausgewählt werden. Zu Beispielen für derartige Polymere gehören Kraton D 1107, Kraton D KX 601 Cs, Kraton D 1114 und Vector 4111.

[0054] Wie bereits erwähnt, weist eine erfindungsgemäße Schmelzzubereitung vorzugsweise eine Schmelzviskosität unter 100000 mPas (CPS), gemessen bei 175°C, und insbesondere von weniger als 60000 mPas bei 175°C auf. Die besonders bevorzugte Schmelzviskosität bei 175°C liegt im Bereich von 35000 bis 50000 mPas. Da die Verringerung der Viskosität nicht durch Zugabe von aromatischen Monomeren zum Polymerisationseinsatzmaterial hervorgerufen wird, weist das erfindungsgemäße Harz gegenüber sämtlichen bekannten Harzen, die für derartige Anwendungen eingesetzt werden, folgende Vorteile auf:

1. – Aufgrund des höheren Anteils an cyclischen Strukturen weist das Harz eine geringere Schmelzviskosität als aliphatische Harze, wie Piccotac 95E und Escorez 1310, in einer vergleichbaren Schmelzhaftkleberzusammensetzung auf.
2. – Aufgrund des höheren Anteils an cyclischen Strukturen und somit eines geringeren Molekulargewichts des Harzes weist die Schmelzzusammensetzung, die das erfindungsgemäße Harz enthält, eine Kugelrollklebrigkeit auf, die mit dem Wert von vorhandenen aliphatischen oder aromatisch modifizierten Harzen, wie Piccotac 95E oder Escorez 2203 und Hercotac 1148, vergleichbar oder sogar besser ist.
3. – Da sehr wenig Aromaten eingebaut sind, ergeben die erfindungsgemäßen Harze günstigere Hochtemperatur-Scherfestigkeitswerte als aromatisch modifizierte Harze, wie Escorez 2203, Hercotac 1148 und Hercules RESIN A.

#### Beispiele

[0055] Die Beispiele 1 bis 4 erläutern den Einfluß der Polymerisationsbedingungen auf die Harzeigenschaften. Die Vorteile in bezug auf die letztendliche Schmelzviskosität bei 175°C werden auch in einer Zubereitung mit Kraton D 1107 und Shellflex FC 451 in einer Polymer/Harz/Öl-Gewichtsfraction von 100/120/20 belegt.

[0056] Das erfindungsgemäße Harz, das in den nachstehenden Beispielen verwendet wird, wird in den folgenden Ausführungen als "erfindungsgemäßes aliphatisches Kohlenwasserstoffharz" oder kurz als "erfindungsgemäßes Harz" bezeichnet.

[0057] Eine typische Zusammensetzung der verwendeten Petroleumseinsatzmaterialströme (mit und ohne Cyclodiolefine) und des in der Anlage wiedergewonnenen Lösungsmittels ist nachstehend aufgeführt:



<b>Strom</b>	<b>Superpipe- rylen</b>	<b>reguläres Piperylen</b>	<b>Lösungs- mittel</b>
<b>Einsatzmaterial</b>	<b>A</b>	<b>B</b>	
Isobutylen*	0,0	0,0	0,0
n-Pentan	0,2	0,0	1,5
Isopren*	0,5	0,5	0,0
Trans-2-Penten	1,8	0,9	2,5
cis-2-Penten	3,0	1,9	2,2
Isoamylen*	7,8	5,6	0,3
tert.-Piperylen*	40,8	33,2	0,1
cis-Piperylen*	23,0	18,7	0,0
Cyclopenten	16,6	13,4	6,7
Cyclopentan	4,8	3,8	18,3
Cyclopentadien*	0,6	4,7	0,0
Dicyclopentadien*	0,0	9,4	0,0
andere C5- und C6-Produkte	1,1	4,4	16,0
Toluol	0,0	0,0	2,4
Monomere (*)	72,6	72,2	0,5

[0058] Nicht sämtliche in den Beispielen erwähnten Harze wurden unter Verwendung von exakt den gleichen vorerwähnten Einsatzmaterialströmen hergestellt; jedoch sind diese Zusammensetzungen aufgeführt, da diese Ergebnisse typisch sind und alle übrigen verwendeten Petroleumeinsatzmaterialien und Lösungsmittel repräsentieren. Bei dem in den Beispielen verwendeten Katalysator handelt es sich um eine 52 gew.-%ige  $\text{AlCl}_3$ -Lösung.

[0059] Die Abkürzungen und die Handelsbezeichnungen, die nachstehend verwendet werden, sind im folgenden experimentellen Abschnitt erklärt.

[0060] Das Einsatzmaterial A ergibt kein Harz in Übereinstimmung mit der vorliegenden Erfindung.

#### Beispiel 1

[0061] Tabelle 1 zeigt den Einfluß der Verwendung einer größeren Katalysatormenge, für ein Einsatzmaterial mit cyclodiolefinischen Komponenten und ein Einsatzmaterial ohne cyclodiolefinische Komponenten auf die Eigenschaften des endgültigen Harzes.

Tabelle 1  
Einfluß der Katalysatorkonzentration

<b>Einsatzmaterial</b>	<b>A</b>	<b>A</b>	<b>B</b>	<b>B</b>
Beispiel Nr.	1a	1b	1c	1d
Piperylen (A/B)	41,3	41,3	36,0	36,0
PR-Lösungsmittel	58,7	58,7	64,0	64,0
Katalysator	3,0	5,0	3,0	5,0
Temperatur	55	55	45	45
Isobutylen	12	12	13	13
Ring-Kugel-Erweichungspunkt	89,2	89,3	90,1	93,1
MMAP	94	92	90	88
Farbe	3,6	4,7	5,2	6,1
Mn	728	689	920	871
Mw	1366	1235	1648	1444
Mz	2158	1941	3019	2525
Pd	1,88	1,79	1,79	1,66
Viskosität	52900	41500	52200	44200
Kugelklebrigkeit (cm)	1,2	2,0	1,6	2,4
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	13,1	11,7	15,2	17,1
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	25,4	21,4	28,8	26,4
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	97	95	94	93
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	1130	731	85	56
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	38	52	98	37
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	744	584	960	876

[0062] Die Ergebnisse zeigen klar, daß aufgrund der höheren Katalysatorkonzentration der MMAP-Wert und das Molekulargewicht abnehmen, während der Ring-Kugel-Erweichungspunkt fast gleich bleibt oder nur einen geringen Anstieg zeigt. Die Viskosität nimmt drastisch ab, wenn mehr Katalysator verwendet wird.

#### Beispiel 2

[0063] Tabelle 2 zeigt den Einfluß der Anwendung von höheren Reaktionstemperaturen für ein Einsatzmaterial mit cyclodiolefinischen Komponenten und ein Einsatzmaterial ohne cyclodiolefinische Komponenten auf die endgültigen Harzeigenschaften.

Tabelle 2  
Einfluß der Temperatur

<b>Einsatzmaterial</b>	<b>A</b>	<b>A</b>	<b>B</b>	<b>B</b>
Beispiel Nr.	2a	2b	2c	2d
Piperylen (A/B)	41,3	41,3	36,0	36,0
PR-Lösungsmittel	58,7	58,7	64,0	64,0
Katalysator	5,0	5,0	3,0	3,0
Temperatur	15	55	45	65
Isobutylene	12	12	13	13
Ring-Kugel-Erweichungspunkt	83,3	89,3	90,1	92,0
MMAP	93	92	90	89
Farbe	2,4	4,7	5,2	6,2
Mn	975	689	920	801
Mw	1501	1235	1648	1417
Mz	2402	1941	3019	2636
Pd	1,54	1,79	1,79	1,77
Viskosität	50700	41500	52200	41200
Kugellebbarkeit (cm)	1,0	2,0	1,6	1,6
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	11,9	11,7	15,2	14,1
Schlingen-Klebarkeit (N/25mm)	26,3	21,4	28,8	28,3
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	96	95	94	93
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	856	731	85	32
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	37	52	98	140
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	597	584	960	952

[0064] Die Ergebnisse zeigen klar, daß aufgrund einer höheren Temperatur der MMAP-Wert und das Molekulargewicht geringfügig abnehmen, während der Ring-Kugel-Erweichungspunkt einen Anstieg zeigt. Bei Anwendung höherer Temperaturen sinkt die Schmelzviskosität drastisch.

[0065] Bei Erhöhung der Temperatur von 60 auf 80 und 100°C wurden die gleichen Tendenzen für die Harzeigenschaften festgestellt.

[0066] Die Ergebnisse sind in der nachstehenden Tabelle aufgeführt.

Tabelle 3  
Einfluß der Temperatur

Einsatzmaterial	B	B	B
Beispiel Nr.	2e	2f	2g
Piperylen (B)	40,0	40,0	40,0
PR-Lösungsmittel	60,0	60,0	60,0
Katalysator	3,6	3,6	3,6
Temperatur	60	80	100
Isobutylen	8,0	8,0	8,0
Ring-Kugel-Erweichungspunkt	94,1	99,6	101,5
MMAp	85	82	78
Farbe	5,5	6,9	8,7
Mn	874	828	765
Mw	1393	1374	1394
Mz	2490	2751	3368
Pd	1,59	1,66	1,82
Viskosität (mPas)	42800	37100	29500
Kugellebbarkeit (cm)	1,4	2,0	2,0
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	14,8	17,0	15,6
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	24,6	27,7	24,9
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	94	96	96
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	27	51	29
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	158	157	173
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	890	1038	1380

Beispiel 3

[0067] Tabelle 4 erläutert den Vorteil der Verwendung eines Einsatzmaterials mit einem höheren Gehalt an Cycloolefinen und Cyclodiolefinen. Für dieses Beispiel wurden Harze mit einem ähnlichen Ring-Kugel-Erweichungspunkt und Molekulargewicht gewählt.

Tabelle 4  
Einflüsse der Einsatzmaterialzusammensetzung

<b>Einsatzmaterial</b>	<b>A</b>	<b>B</b>	<b>A</b>	<b>B</b>
Beispiel Nr.	3a	3b	3c	3d
Piperylen (A/B)	41,3	36,0	41,3	36,0
PR-Lösungsmittel	58,7	64,0	58,7	64,0
Katalysator	3,0	3,0	4,0	3,75
Temperatur	55	65	35	50
Isobutylen	4,0	7,0	8,0	10,0
Ring-Kugel-Erweichungspunkt	104,5	104,9	95,1	96,1
MMAp	95	89	94	87
Farbe	2,9	5,7	2,7	5,6
Mn	1146	928	1075	837
Mw	2076	1906	1759	1548
Mz	4024	4207	3023	3042
Pd	1,81	2,05	1,64	1,85
Viskosität (mPas)	76000	50000	68200	37900
Kugelklebrigkeit (cm)	1,7	3,8	2,2	3,0
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	16,1	19,0	15,3	20,7
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	27,0	31,4	27,5	32,8
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	98	95	101	93
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	1321	149	511	232
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	303	288	89	120
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	1180	1056	1014	809

[0068] Die Beispiele zeigen klar, daß Harze mit ähnlichen Ring-Kugel-Erweichungspunkten und Molekulargewichten sich in bezug auf den MMAp-Wert und die Schmelzviskosität der Schmelzhaftkleberzusammensetzung unterscheiden. Die Anwesenheit von Cyclodiolefinen, wie Cyclopentadien und Dicyclopentadien, trägt bereits weitgehend zum cyclischen Charakter des Harzes bei und verursacht eine niedrigere Schmelzviskosität der Schmelzzubereitung und einen geringeren MMAp-Wert des Harzes. Im allgemeinen ist ersichtlich, daß bei Anwesenheit von cyclischen Diolefinen eine höhere Katalysatormenge oder eine höhere Temperatur und eine höhere Menge an Kettenübertragungsmittel erforderlich sind, um ähnliche Werte in bezug auf den Ring-Kugel-Erweichungspunkt und das Molekulargewicht zu erhalten. Die Verwendung eines Einsatzmaterials mit einem Gehalt an Cycloolefinen und Cyclodiolefinen scheint die Molekulargewichtsverteilung geringfügig zu verbreitern.

#### Beispiel 4

[0069] Die in Tabelle 5 aufgeführten Harze stellen Beispiele für Harze mit besonders bevorzugten Eigenschaften zur Verwendung als Klebrigmacher in Schmelzkleberzusammensetzungen dar.

Tabelle 5  
Optimale Harze, bezogen auf beide Einsatzmaterialien

<b>Einsatzmaterial</b>	<b>A</b>	<b>B</b>	<b>B</b>	<b>B</b>
Beispiel Nr.	4a	4b	4c	4d
Piperylen (A/B)	41,3	36,0	40,0	36,0
PR-Lösungsmittel	58,7	64,0	60,0	64,0
Katalysator	4,0	4,0	4,0	3,75
Temperatur	70	55	55	50
Isobutylene	6,0	10,0	9,0	10,0
Ring-Kugel-Erweichungspunkt	98,0	97,1	96,5	96,1
MMAp	93	87	86	87
Farbe	4,5	6,1	5,9	5,6
Mn	901	802	827	837
Mw	1470	1436	1459	1548
Mz	2596	2595	2806	3042
Pd	1,63	1,79	1,76	1,85
Viskosität	49200	43000	--	37900
Kugelklebrigkeit (cm)	2,6	3,2	--	3,0
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	14,5	17,3	--	20,7
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	19,1	34,0	--	32,8
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	102	95	--	93
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	337	155	--	232
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	73	168	--	120
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	1446	1309	--	809

[0070] Insbesondere stellen die Produkte 4b, 4c und 4d gute Beispiele für erfindungsgemäß hergestellte Harze dar. Sämtliche drei Harze fallen unter den Umfang der Erfindung gemäß der Definition in den beigefügten Ansprüchen und beruhen auf einem Einsatzmaterial mit einem Gehalt an cyclodiolefinischen Komponenten. Die Harze der Beispiele 4b und 4d zeigen eine gute Kugelklebrigkeit und ausreichend hohe Scherfestigkeitswerte.

#### Beispiel 5

[0071] Zur Bestimmung der Abnahme des MMAp-Werts, die durch die Einverleibung von Toluol aus dem Prozeßlösungsmittel oder durch die Cyclisierungsreaktion hervorgerufen wurde, wurden IR- und NMR-Analysen mit dem Ziel durchgeführt, den Anteil an im Harz vorhandenen aromatischen Protonen zu bestimmen.

Tabelle 6  
NMR-Ergebnisse von mehreren Proben

Harz	6,5-7,5 ppm	4,7-5,4 ppm	0,5-3 ppm
Harz B	7,84	5,00	87,15
Harz C	2,58	2,87	94,55
erfindungsgemäßes Harz	0,69	2,76	96,55
HERCULES® C	0,87	4,15	94,98
PICCOTAC® 95E	0,59	3,37	96,04

[0072] Die Tabelle gibt die prozentualen Anteile der aromatischen Protonen (zwischen 6,5 und 7,5 ppm) im Vergleich zu den prozentualen Anteilen von =CH<sub>2</sub>-ähnlichen Protonen (4,7 bis 5,4 ppm) und zu aliphatischen Protonen (0,5 bis 3,0 ppm) an.

[0073] Es zeigt sich klar, daß der Anteil an Protonen im aromatischen Bereich für das erfindungsgemäße Harz vergleichbar ist mit anderen aliphatischen Harzen, wie Hercules® C und Piccotac © 95E. Die beiden letztgenannten Harze weisen einen MMAP-Wert von 93-95°C auf, während das erfindungsgemäße Harz einen MMAP-Wert von 86°C besitzt.

[0074] Das Harz C, bei dem es sich um ein zu 5 Gew.-% aromatisch modifiziertes aliphatisches Harz mit einem MMAP-Wert von 85°C handelte, ergab einen erheblich höheren Anteil an aromatischen Protonen. Ein stärker aromatisch modifiziertes Harz (Harz B, etwa 18 Gew.-% des Harzes aromatisch modifiziert) ergab einen höheren Anteil an aromatischen Protonen.

#### Beispiel 6

[0075] Tabelle 7 zeigt die Ergebnisse für mehrere Harze in einer Schmelzhaftkleberzusammensetzung im gegenseitigen Vergleich.

Tabelle 7  
HM-PSA-Verhalten in Kraton D 1107

Beispiel Nr.	6a	6b	6c	6d
Kraton D 1107	100	100	100	100
erfindungsgemäßes Harz	120			
Harz B		120		
PICCOTAC® 95E			120	
HERCOTAC® 1148				120
Shellflex 451 FC	20	20	20	20
Irganox 1010	2	2	2	2
Viskosität bei 175°C (mPas)	37900	58800	59500	45500
Kugellebbarkeit (cm)	3,0	7,0	3,6	5,7
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	20,7	17,1	16,9	19,9
Schlingen-Klebbarkeit (N/25mm)	32,8	29,0	30,5	30,8
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	93	93	96	97
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	232	391	723	620
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	120	353	201	121
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	809	310	1326	691

[0076] Die Ergebnisse zeigen klar, daß die Schmelzviskosität und die Kugellebbarkeit unter Verwendung

des erfindungsgemäßen Harzes die günstigsten Werte von sämtlichen getesteten Harzen darstellen. Die Scherfestigkeit an Karton bei 40°C unterscheidet sich für die vier Harze nicht signifikant. Die Scherfestigkeit an Stahl bei 70°C ist für das erfindungsgemäße Harz besser als bei Verwendung von Hercotac 1148 und Hercules Harz B (zu 18 Gew.-% aromatisch modifiziertes aliphatisches Harz). Die Verwendung von Piccotac 95E (aliphatisches Harz) führt zu einer besseren Hochtemperaturscherfestigkeit an Stahl, aber auch zu einer höheren Viskosität.

[0077] Das erfindungsgemäße Harz wurde auch mit einigen konkurrierenden Harzproben verglichen. Getestet wurden Escorez 1310 LC, ein aliphatisches Harz ähnlich wie Piccotac 95E und Escorez 2203 LC, ein geringfügig aromatisch modifiziertes Harz, vergleichbar mit Hercotac 1148.

[0078] Ferner wurde auch Hercules RESIN A verglichen. Hercules RESIN A ist ähnlich wie Hercules RESIN B ein stärker aromatisch modifiziertes Harz als Escorez 2203 und Hercotac 1148.

Tabelle 8  
HM-PSA-Verhalten in Kraton D 1107

Beispiel Nr.	6a	6b	6c	6d
Kraton D 1107	100	100	100	100
erfindungsgemäßes Harz	120			
Escorez 1310 LC		120		
Escorez 2203 LC			120	
RESIN A				120
Shellflex 451 FC	20	20	20	20
Irganox 1010	2	2	2	2
Viskosität bei 175°C (mPas)	37900	85400	45000	40000
Kugelklebrigkeit (cm)	3,0	2,6	3,8	6,6
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	20,7	14,5	17,8	18,1
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	32,8	19,1	30,7	25,7
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	93	102	95	85
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	232	337	242	383
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	120	73	134	177
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	809	1446	781	102

[0079] Die Ergebnisse zeigen erneut, daß die Schmelzviskosität und die Kugelrollklebrigkeit unter Verwendung des erfindungsgemäßen Harzes vergleichbar mit den Eigenschaften eines geringfügig aromatisch modifizierten Harzes, wie Escorez 2203 LC, sind. Die Kugelrollklebrigkeit unter Verwendung von Hercules RESIN A war aufgrund des höheren Molekulargewichts höher. Die Schmelzviskosität unter Verwendung von Escorez 1310 LC ist höher als bei Piccotac 95E und insbesondere als beim erfindungsgemäßen Harz. Die Scherfestigkeit an Stahl bei 70°C unter Verwendung des erfindungsgemäßen Harzes war besser als für Hercules RESIN A. Die Verwendung von Escorez 1310 LC ergibt eine bessere Hochtemperatur-Scherfestigkeit an Stahl, ähnlich wie für Piccotac 95E, führt aber auch zur höchsten Viskosität.

#### Beispiel 7

[0080] Die erfindungsgemäßen aliphatischen Kohlenwasserstoffharze wurden auch in anderen S-I-S-Polymeren im gleichen Polymer/Harz/Öl-Verhältnis bewertet.



Tabelle 9  
HM-PSA-Verhalten in Zusammensetzungen mit verschiedenen Polymeren

Beispiel Nr.	7a	7b	7c	7d
Kraton D 1107	100			
Kraton D KX-601-CS		100		
Kraton D 1114-X			100	
Vector 4111				100
erfindungsgemäßes Harz	120	120	120	120
Shellflex 451 FC	20	20	20	20
Irganox 1010	2	2	2	2
Viskosität bei 175°C (mPas)	37900	48200	37800	47200
Kugelklebrigkeit (cm)	3,0	1,6	1,8	1,6
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	20,7	15,6	14,7	14,3
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	32,8	27,2	24,6	26,3
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	93	95	101	100
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	232	980	1204	924
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	120	63	325	175
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	809	1647	5210	3604

[0081] Die Ergebnisse zeigen klar, daß die Verwendung des erfindungsgemäßen aliphatischen Harzes zu einer geringen Schmelzviskosität bei gleichzeitigen gut ausgewogenen Klebrigkeits- und Scherfestigkeitseigenschaften in sämtlichen vier Polymeren führt.

#### Beispiel 8

[0082] In Tabelle 10 sind einige Ergebnisse unter Variation des Harzes der Ölmengen in der Klebstoffzusammensetzung aufgeführt. Vector 4111 wurde als Polymeres verwendet.

Tabelle 10  
HM-PSA-Verhalten für mehrere Zubereitungen

Beispiel Nr.	8a	8b	8c	8d
Vector 4111	100	100	100	100
Vector 4111 (Gew.-%)	42	45	45	36
erfindungsgemäßes Harz	120	118,6	98,5	148,6
erfindungsgemäßes Harz (Gew.-%)	50	53	44	53
Shellflex 451 FC	20	5,2	25,4	37,8
Shellflex 451 FC (Gew.-%)	8	2	11	11
Irganox 1010	2	2	2	2
Viskosität bei 175°C (mPas)	51600	121200	63500	21800
Kugelklebrigkeit (cm)	2,6	3,0	1,0	1,0
Ablösefestigkeit an Stahl (N/25mm)	16,7	17,0	13,5	19,3
Schlingen-Klebrigkeit (N/25mm)	35,6	31,1	27,7	38,1
SAFT-Wert (0,5 kg, °C)	103	111	101	101
Scherfestigkeit an Karton (40°C, 1kg, min)	409	351	89	60
Scherfestigkeit an Stahl (40°C, 2,5 kg, min)	639	1342	298	574
Scherfestigkeit an Stahl (70°C, 0,5 kg, min)	2718	14000	835	900

[0083] Die vorstehenden Zubereitungen zeigen, daß die Mengen an Polymerem, Harz und Öl variiert werden können, um die Schmelzviskosität zu steuern, während die Klebrigkeits- und Schereigenschaften immer noch ausreichend sind.

[0084] Die Beispiele 1a, 1b, 2a, 2b, 3a, 3c 4a und 8b sind Vergleichsbeispiele.

#### Experimenteller Teil – Materialien & Methoden

##### Abkürzungen

[0085] Im vorstehenden Text und in den Tabellen werden die folgenden Abkürzungen verwendet:

PR-Lösungsmittel	für die Polymerisationsreaktion verwendetes Lösungsmittel
R&B	Kugel-Ring-Erweichungspunkt (gemessen auf die nachstehend beschriebene Weise)
MMAp	Misch-Methylcyclohexan-Anilin-Trübungspunkt (gemessen auf die nachstehend beschriebene Weise)
Mn	Zahlenmittel des Molekulargewichts
Mw	Gewichtsmittel des Molekulargewichts
Mz	Z-Mittel des Molekulargewichts
Pd	Polydispersität (= Mw/Mn)
AH-Zubereitung	Nummer des Schmelzklebers
HM-PSA	Schmelzhaftkleber
SAFT	Scherhaftungs-Ausfalltemperatur

##### Methoden

##### Verfahren zur Herstellung der Harze:

[0086] Sämtliche hier erwähnten Harze wurden in einem kontinuierlichen Verfahren hergestellt, wobei aber auch eine absatzweise Herstellung möglich wäre. Das Harzeinsatzmaterial wurde über einer Calciumchlorid- und einer Molekularsieb-Trocknungsvorrichtung getrocknet und zusammen mit dem Kettenübertragungsmittel

mit einer Geschwindigkeit von 1500 ml/h in einen kontinuierlich gerührten Tankreaktor von 6 Litern Fassungsvermögen gegeben. Der Katalysator wurde gleichzeitig zugesetzt. Das Gemisch wurde vom Boden des Reaktors zu der Katalysator-Einlaßstelle im Kreislauf geführt. Das Gemisch wurde kontinuierlich in einer Menge von 3 Litern/Stunde entfernt, so daß die Reaktionszeit für sämtliche Versuche 2 Stunden betrug. Das Gemisch wurde mit Wasser desaktiviert und in drei Stufen mit Wasser gewaschen, bevor es unter Vakuum und mit Dampf abgestreift wurde, um das Lösungsmittel und sämtliche niedermolekularen Materialien zu entfernen.

Verfahren zur Bestimmung des Ring-Kugel-Erweichungspunkts:

[0087] Der Ring-Kugel-Erweichungspunkt wurde gemäß ASTM D-36-70 mit der Walter Herzog R&B-Vorrichtung, Modell MC-735, bestimmt.

Verfahren zur Bestimmung des MMAP-Werts:

[0088] Der MMAP-Wert (Misch-Methylcyclohexan-Anilin-Trübungspunkt) wurde nach einem modifizierten ASTM D-611-82-Verfahren bestimmt. Methylcyclohexan wurde anstelle des im Standardtestverfahren verwendeten Heptans eingesetzt. Beim Verfahren werden Harz/Anilin/Methylcyclohexan in einem Verhältnis von 1/2/1 (5 g/10 ml/5 ml) verwendet. Der Trübungspunkt wird durch Abkühlen einer erwärmten, klaren Mischung der drei Komponenten bis zum Auftreten einer vollständigen Trübung bestimmt.

Verfahren zur Bestimmung der Harzfarbe:

[0089] Zur Bestimmung der Gardner-Farbe wurde das Harz bei Raumtemperatur mit Toluol von Reagenzienqualität bis zum Lösen des gesamten Harzes versetzt. Die Farbe wurde spektrophotometrisch unter Verwendung der Dr. Lange LICO 200-Vorrichtung bestimmt.

Verfahren zur Bestimmung des Molekulargewichts:

[0090] Die Molekulargewichtswerte  $M_n$ ,  $M_w$ ,  $M_z$  und die Polydispersität ( $= M_w/M_n$ ) wurden durch Größenausschlußchromatographie unter Verwendung eines Brechungsindex-Detektors bestimmt.

Verfahren zur Bestimmung der NMR-Spektren:

[0091] Die NMR-Spektren des Harzes wurden in  $CDCl_3$  als Lösungsmittel bestimmt.

Verfahren zur Bestimmung der Viskosität:

[0092] Die Schmelzviskosität wurde unter Verwendung eines Brookfield-Viscositätsmeßgeräts bei 175°C gemäß ASTM D-3236 bestimmt.

Verfahren zur Bestimmung der Ablösefestigkeit:

[0093] Die Ablösefestigkeit wurde durch einen PSTC-1-Test gemessen.

Verfahren zur Bestimmung der Kugelklebrigkeit:

[0094] Die Kugelklebrigkeit wurde durch einen PSTC-6-Test gemessen.

Verfahren zur Bestimmung der Schleifenklebrigkeit:

[0095] Die Schleifenklebrigkeit wurde durch einen FINAT-9-Test gemessen.

Verfahren zur Bestimmung der Scherfestigkeit:

[0096] Die Scherfestigkeitswerte wurden durch einen PSTC-7-Test gemessen.

Verfahren zur Bestimmung des SAFT-Wertes:

[0097] Die Scherhaftung-Ausfalltemperatur (SAFT) wurde gemäß dem Hercules-Testverfahren WI 20/1/W126 bestimmt.

## Materialien

[0098] Folgende Materialien wurden zur Herstellung der Klebstoffzusammensetzungen in den Beispielen verwendet:

[0099] Shellflex 451 FC – ein paraffinisches Extenderöl der Firma Shell

[0100] KRATON D 1107 – ein Polystyrol-Polyisopren-Polystyrol (S-I-S)-Triblockcopolymeres der Firma Shell Chemical mit einem Styrolgehalt von 15 Gew.-%, einem Diblockgehalt von 19 Gew.-%, einem Schmelzindex von 9 g/10 min und einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts von 205000 Dalton.

[0101] KRATON D KX-601-CS – ein Polystyrol-Polyisopren-Polystyrol (S-I-S)-Triblockcopolymeres der Firma Shell Chemical mit einem Styrolgehalt von 15 Gew.-%, einem Diblockgehalt von 19 Gew.-%, einem Schmelzindex von 9 g/10 min und einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts von 205000 Dalton.

[0102] KRATON D 1114-X – ein lineares Polystyrol-Polyisopren-Polystyrol-Triblockcopolymeres der Firma Shell Chemical mit einem Styrolgehalt von 19,0 Gew.-%, einem Schmelzindex von 11 g/10 min, einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts von etwa 160000 und 0 Gew.-% Diblocken (SI).

[0103] Vector 4111 S-I-S – ein lineares Polystyrol-Polyisopren-Polystyrol-Triblockcopolymeres der Firma Dexco Polymers mit einem Styrolgehalt von 19,0 Gew.-%, einem Schmelzindex von 11 g/10 min, einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts von etwa 170000 und 0 Gew.-% Diblocken (SI).

[0104] Hercules Hercotac 1148-Kohlenwasserstoffharz – ein Petroleumharz der Firma Hercules mit einem Gehalt von etwa 5–10 Gew.-% eines polymerisierten aromatischen Monomeren und einem Erweichungspunkt von etwa 95°C.

[0105] Hercules Piccotac x95E-Kohlenwasserstoffharz – ein Petroleumharz ohne jegliche polymerisierten aromatischen Komponenten mit einem Erweichungspunkt von etwa 95°C und einem Zahlenmittel des Molekulargewichts von etwa 1100 Dalton.

[0106] Escorez 1310 LC – ein Petroleumharz der Firma Exxon mit einem Gehalt von etwa 0,3 Gew.-% an polymerisiertem Styrol und mit einem Erweichungspunkt von etwa 93,5°C.

[0107] Escorez 2203 LC – ein Petroleumharz der Firma Exxon mit einem Gehalt an etwa 8–10 Gew.-% polymerisiertem Styrol, einem Erweichungspunkt von etwa 92°C und einem Zahlenmittel des Molekulargewichts von etwa 1150.

[0108] Wingtack 95 – ein Petroleumharz der Firma Good Year, ähnlich wie Piccotac 95E und Escorez 1310, mit einem Erweichungspunkt von etwa 96°C und einem Zahlenmittel des Molekulargewichts von etwa 1100.

[0109] Hercules RESIN A-Kohlenwasserstoffharz – ein Petroleumharz der Firma Hercules mit einem Gehalt an etwa 10–25 Gew.-% einiger polymerisierter aromatischer Monomeren und einem Erweichungspunkt von etwa 95°C.

[0110] Hercules RESIN B-Kohlenwasserstoffharz – ein Petroleumharz der Firma Hercules mit einem Gehalt an etwa 10–25 Gew.-% eines polymerisierten aromatischen Monomeren und mit einem Erweichungspunkt von etwa 92°C und einer Farbe von etwa 3 Gardner.

[0111] Hercules RESIN C-Kohlenwasserstoffharz – ein Petroleumharz der Firma Hercules mit einem Gehalt an etwa 3–10 Gew.-% eines polymerisierten aromatischen Monomeren und mit einem Erweichungspunkt von etwa 94°C.

[0112] Irganox 1010 – ein Antioxidationsmittel mit einem Gehalt an vorwiegend Pentaerythryl-tetrakis [3-(3,5-di-tert.-butyl-4-hydroxyphenyl)-propionat] als handelsübliche Probe der Firma Ciba-Geigy.

### Patentansprüche

#### 1. Aliphatisches Harz auf Petroleumbasis mit

- a) einem Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C
- b) einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts (Mw) von 1000 bis 2600 Dalton, einem Z-Mittel des Molekulargewichts (Mz) von 1900 bis 5000 Dalton und einem Mw/Mn-Wert unter 2,0,
- c) einem Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch <sup>1</sup>H-NMR bestimmte Protonen,
- d) einen Misch-Methylcyclohexan-Anilin-Trübungspunkt (MMAp) von 90°C oder weniger.

#### 2. Harz nach Anspruch 1, wobei der Ring-Kugel-Erweichungspunkt 90 bis 100°C beträgt.

#### 3. Harz nach den Ansprüchen 1 oder 2, das einen Mw-Wert unter 2000 Dalton, einen Mz-Wert unter 4000 Dalton und einen Mw/Mn-Wert unter 2,0 aufweist.

#### 4. Verwendung eines Harzes nach einem der Ansprüche 1 bis 3 zur Herstellung einer Schmelzhaftkleberzusammensetzung.

5. Verwendung eines Harzes nach einem der Ansprüche 1 bis 3 als Ausgangsmaterial für ein Hydrierungs-, Hydrotreating- und/oder Abschreckverfahren zur Verbesserung der Harzfarbe.
6. Schmelzhaftkleberzusammensetzung, die ein Harz auf Petroleumbasis nach den Ansprüchen 1 bis 3 und ein Polymeres enthält.
7. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach Anspruch 6, wobei es sich beim Polymeren um ein Styrol-Isopren-Styrol (S-I-S)-Polymeres handelt.
8. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach Anspruch 7, wobei es sich beim polymeren um ein S-I-S-Blockcopolymeres mit einem Gehalt an 10 bis 30 Gew.-% Styrol handelt.
9. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach den Ansprüchen 6 bis 8, die ferner ein Extenderöl enthält.
10. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach den Ansprüchen 6 bis 8, die 70–200 Gewichtsteile eines aliphatischen Harzes auf Petroleumbasis, 100 Gewichtsteile eines Polymeren und 0– 70 Gewichtsteile eines Extenderöls enthält.
11. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach den Ansprüchen 6 bis 9, die 90–150 Gewichtsteile eines aliphatischen Harzes auf Petroleumbasis, 100 Gewichtsteile eines Polymeren und 5– 50 Gewichtsteile eines Extenderöls enthält.
12. Schmelzhaftkleberzusammensetzung, enthaltend
  - a) 100 Gewichtsteile eines Styrol-Isopren-Styrol (S-I-S)-Kautschuks,
  - b) 70 bis 200 Gewichtsteile eines aliphatischen Harzes auf Petroleumbasis, das folgende Eigenschaften aufweist:
    - einen Ring-Kugel-Erweichungspunkt im Bereich von 75 bis 110°C,
    - ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts ( $M_w$ ) von 1000 bis 2600 Dalton, ein Z-Mittel des Molekulargewichts ( $M_z$ ) von 1900 bis 5000 Dalton und einen  $M_w/M_n$ -Wert unter 2,0,
    - einen Anteil an aromatischen Protonen unter 1,5%, bezogen auf sämtliche durch  $^1\text{H-NMR}$  bestimmte Protonen und
    - einen Misch-Methylcyclohexan-Anilin-Trübungspunkt (MMAp) von 90°C oder weniger
  - c) 0–70 Gewichtsteile eines Extenderöls,dadurch gekennzeichnet, daß die Zusammensetzung eine Viskosität von 100000 mPas oder weniger, gemessen gemäß dem ASTM-Verfahren D3236 bei 175°C mit einem Brookfield-Viskositätsmeßgerät, aufweist.
13. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach Anspruch 12, die bei 175°C eine Viskosität von 80000 mPas oder weniger aufweist.
14. Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach Anspruch 13, die bei 175°C eine Viskosität von 35000 bis 50000 mPas aufweist.
15. Verwendung der Schmelzhaftkleberzusammensetzung nach einem der Ansprüche 6 bis 14 zur Herstellung eines Klebestreifens oder eines Klebeetiketts.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen