

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
COURBEVOIE

①1 N° de publication :
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

3 054 549

②1 N° d'enregistrement national : **16 57403**

⑤1 Int Cl⁸ : **C 08 L 33/00** (2017.01), C 08 L 33/12, C 08 K 7/16,
B 29 C 47/00, F 21 V 3/04, F 21 Y 101/00

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 29.07.16.

③0 Priorité :

④3 Date de mise à la disposition du public de la
demande : 02.02.18 Bulletin 18/05.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du
présent fascicule*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

Demande(s) d'extension :

⑦1 Demandeur(s) : *ARKEMA FRANCE Société anonyme*
— FR.

⑦2 Inventeur(s) : QUERUEL SYLVAIN et ROY CEDRIC.

⑦3 Titulaire(s) : *ARKEMA FRANCE Société anonyme.*

⑦4 Mandataire(s) : *ARKEMA FRANCE Société anonyme.*

⑤4 **COMPOSITION (METH)ACRYLIQUE COMPRENANT DES PARTICULES, SON PROCEDE DE PREPARATION,
SON UTILISATION ET OBJET COMPRENANT CELLE-CI.**

⑤7 La présente invention concerne une composition de polymère (méth) acrylique comprenant des particules de polymère de silicone et des particules de polymère (méth) acrylique.

En particulier, la présente invention concerne une composition de polymère (méth) acrylique comprenant des particules de polymère de silicone ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 10 µm et des particules de polymère (méth) acrylique ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 µm et 100 µm.

La présente invention concerne en outre l'utilisation d'une telle composition de polymère (méth) acrylique comprenant des particules de polymère de silicone et des particules de polymère (méth) acrylique.

La présente invention concerne en outre un objet comprenant ou constitué d'une telle composition (méth) acrylique comprenant des particules de polymère de silicone et des particules de polymère (méth) acrylique.

FR 3 054 549 - A1



**Composition (méth)acrylique comprenant des particules, son procédé
de préparation, son utilisation et objet comprenant celle-ci**

[Domaine de l'invention]

5 [001] La présente invention concerne une composition de polymère (méth)acrylique comprenant des particules de polymère de silicone et des particules de polymère (méth)acrylique.

[002] En particulier, la présente invention concerne une composition de polymère (méth)acrylique comprenant des particules de polymère de silicone ayant un diamètre de particule moyen en poids compris
10 entre 1 μm et 10 μm et des particules de polymère (méth)acrylique ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm .

[003] La présente invention concerne en outre l'utilisation d'une telle composition de polymère (méth)acrylique comprenant des
15 particules de polymère de silicone et des particules de polymère (méth)acrylique.

[004] La présente invention concerne en outre un objet comprenant ou constitué d'une telle composition (méth)acrylique comprenant des
20 particules de polymère de silicone et des particules de polymère (méth)acrylique.

[Problème technique]

[005] Des polymères thermoplastiques, et particulièrement des
25 polymères (méth)acryliques sont largement utilisés, comprenant des applications d'éclairage. Cela est principalement dû à ses caractéristiques en tant que matériau polymère hautement transparent ayant une excellente résistance au rayonnement ultraviolet et aux intempéries. Ainsi, des polymères (méth)acryliques sont utilisés,
30 par exemple, dans des lampes, des luminaires, des couvertures d'éclairage, des affichages, des étagères éclairées, des surfaces et des signaux éclairés.

[006] Les applications d'éclairage ont différentes exigences concernant les polymères (méth)acryliques ou les compositions à base
35 de polymères (méth)acryliques telles que la transmission de lumière, le pouvoir diffusant. Ces compositions à base de polymères (méth)acryliques comprennent généralement des particules plus ou

moins sphériques, qui sont également des particules polymères ou des particules organiques ou inorganiques.

5 **[007]** De plus, il est également d'un grand intérêt de disposer d'une composition de polymère ayant un bon compromis entre la transmission de lumière et les propriétés de diffusion.

[008] L'objectif de la présente invention est de décrire une composition de polymère (méth)acrylique ayant des propriétés optiques satisfaisantes pour les applications d'éclairage.

10 **[009]** Un autre objectif de la présente invention est de décrire un procédé de production d'une composition de polymère (méth)acrylique ayant de bonnes propriétés optiques et propriétés de surface pour des applications d'éclairage.

15 **[010]** Un autre objectif de la présente invention est de décrire une composition de polymère (méth)acrylique qui combine simultanément des propriétés exceptionnelles de transmission et de diffusion.

20 **[011]** Un autre objectif de la présente invention est de décrire une composition de polymère (méth)acrylique qui a une transmission de lumière élevée, au moins 80 %, et ayant simultanément un pouvoir diffusant et un pouvoir masquant relatifs élevés, afin de masquer la source de lumière.

25 **[012]** Un autre objectif de la présente invention est de décrire une composition de polymère (méth)acrylique qui a une transmission de lumière élevée, au moins 80 %, et ayant simultanément un pouvoir diffusant et un pouvoir masquant relatifs élevés, afin de masquer la source de lumière, avec une quantité réduite de particules diffusantes.

30 **[013]** Un autre objectif de la présente invention est de décrire un objet pour des applications d'éclairage comprenant une composition de polymère (méth)acrylique ayant une transmission de lumière élevée, au moins 80 %, et ayant simultanément un pouvoir diffusant et un pouvoir masquant relatifs élevés, afin de masquer la source de lumière.

35 **[CONTEXTE DE L'INVENTION] Art antérieur**

[014] La diffusion de lumière qui augmente le pouvoir de diffusion et le pouvoir masquant relatifs est généralement augmentée par ajout de particules diffusantes à la composition.

5 **[015]** Le document WO2004/034136 décrit un diffuseur en vrac pour un écran plat. Le matériau diffuseur de lumière en vrac peut être une feuille ou un film constitué de polycarbonate et un composant de diffusion de lumière particulaire. Des particules de PMMA et de silicone sont utilisées séparément dans les exemples, mais pas en combinaison conjointement.

10 **[016]** Le document JP11060966 décrit une composition pour des performances de diffusion de lumière élevées. La composition décrite comprend deux types de particules, l'une ayant un diamètre moyen inférieur à 5 μm et l'autre ayant un diamètre moyen compris entre 5 μm et 10 μm . Les particules sont des particules à base de silicone
15 ou de styrène. Cependant, la composition a une transmission faible.

[017] Le document DE102012216081 décrit la fabrication d'une pièce moulée de diffusion de lumière par moulage par injection. La composition pour moulage par injection comprend une matrice de polyméthacrylate de méthyle et des particules de plastique
20 sphériques ayant une taille de particule de 1 à 24 μm .

[018] Le document US 7 897 714 décrit des particules fines de silicone et une composition de résine thermoplastique utilisant les particules. Les particules fines de silicone sont utilisées en tant que diffuseur et ont un diamètre de particule moyen d'environ 2,5 μm
25 à 3,5 μm .

[019] Le document WO2004/098857 décrit un procédé de moulage par injection pour la production d'articles moulés diffusant la lumière. Le matériau de moulage comprend une matrice de polyméthacrylate de méthyle et des particules de plastique sphériques ayant une taille
30 de particule de 1 à 24 μm .

[020] Le document JP10087941 décrit une composition de résine acrylique diffusant la lumière et un produit de moulage diffusant la lumière. Une poudre de caoutchouc silicone est utilisée qui a un diamètre de particule moyen de 0,1 à 50 μm .

35 **[021]** Le document JP10087945 décrit une composition de résine acrylique diffusant la lumière et un corps formé diffusant la

lumière. Une poudre de caoutchouc silicone est utilisée qui a un diamètre de particule moyen de 0,1 à 50 μm .

5 [022] Le document JP11021357 décrit une résine méthacrylique comprenant des particules sphériques d'une résine silicone réticulée.

[023] Le document US 5 831 774 décrit un composite de diffusion de lumière. La couche de diffusion de lumière dudit matériau de diffusion de lumière comprend une résine acrylique en tant que résine liante et des agents de diffusion de lumière comprenant des
10 particules de résine acrylique et des particules de résine silicone. Les deux particules représentent au moins 40 parties en poids de la résine.

[024] L'art antérieur décrit des compositions comprenant un seul
15 type de particules ou un mélange de particules dans la composition qui ne présente pas un compromis satisfaisant entre les propriétés de transmission et de diffusion de la lumière.

[Brève description de l'invention]

20 [025] De manière inattendue il a été découvert qu'une composition comprenant :

a) un polymère (méth)acrylique AP1

b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm

25 c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,

caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les
30 composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) ;

présente un compromis satisfaisant entre la transmission et le pouvoir diffusant de la lumière. Notamment, une feuille de
35 polymère de 2 mm d'épaisseur d'une telle composition a une transmission de lumière pratiquement identique à une feuille sans particules.

[026] Il a également été observé qu'une composition obtenue par un procédé de préparation d'une composition de polymère adaptée pour fabriquer des objets, ladite composition comprenant :

- 5 a) un polymère (méth)acrylique AP1
b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm
c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et
10 100 μm ,
caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition
15 comprenant les composants a), b) et c),
et ledit procédé comprend l'étape de mélange des composants a), b) et c) ; conduit à une composition ayant un compromis satisfaisant entre la transmission et le pouvoir diffusant de la lumière. Notamment, une feuille de polymère de 2 mm
20 d'épaisseur préparée à partir d'une telle composition a une transmission de lumière pratiquement identique à une feuille sans particules.

[027] Il a également été découvert qu'un objet comprenant une
25 composition comprenant :

- a) un polymère (méth)acrylique AP1
b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm
c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un
30 diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,
caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente
35 entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) ;

présente un compromis satisfaisant entre la transmission et le pouvoir diffusant de la lumière. Notamment, un objet sous la forme d'une feuille de polymère de 2 mm d'épaisseur d'une telle composition a une transmission de lumière pratiquement identique à une feuille sans particules.

[028] En outre, il a été découvert qu'une composition comprenant :

a) un polymère (méth)acrylique AP1

b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm

c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,

caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) ;

peut être utilisée pour fabriquer un objet moulé qui présente un compromis satisfaisant entre la transmission et le pouvoir diffusant de la lumière. Notamment, un objet moulé sous la forme d'une feuille de polymère de 2 mm d'épaisseur d'une telle composition a une transmission de lumière pratiquement identique à une feuille sans particules.

[Description détaillée de l'invention]

[029] Selon un premier aspect, la présente invention concerne une composition comprenant :

a) un polymère (méth)acrylique AP1

b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm

c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,

caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids

et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c).

[030] Selon un deuxième aspect, la présente invention concerne un procédé de préparation d'une composition de polymère (adapté pour fabriquer des objets à partir de ladite composition) comprenant :

a) un polymère (méth)acrylique AP1

b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm

c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,

caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c),

caractérisé en ce que ledit procédé comprend l'étape de mélange des composants a), b) et c).

[031] Selon un autre aspect, la présente invention concerne l'utilisation d'une composition comprenant :

a) un polymère (méth)acrylique AP1

b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm

c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,

caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) pour fabriquer un objet.

[032] Un autre aspect supplémentaire de la présente invention concerne un objet comprenant une composition de polymère ou

constitué d'une composition de polymère, ladite composition de polymère comprenant :

a) un polymère (méth)acrylique AP1

b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm

c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,

caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c).

[033] Le terme « (méth)acrylate d'alkyle », dans le présent contexte, désigne à la fois un acrylate d'alkyle et un méthacrylate d'alkyle.

[034] Le terme « copolymère », dans le présent contexte, signifie que les polymères sont constitués d'au moins deux monomères différents.

[035] Le terme « parties », dans le présent contexte, désigne des « parties en poids ».

[036] Le terme « polymère thermoplastique », dans le présent contexte, désigne un polymère qui devient liquide ou qui devient plus liquide ou moins visqueux lorsqu'il est chauffé et qui peut prendre de nouvelles formes par application de chaleur et de pression.

[037] Le terme « PMMA », tel qu'utilisé dans la présente invention, désigne des homo- et copolymères de méthacrylate de méthyle (MMA), le rapport en poids de MMA dans le PMMA étant d'au moins 50 % en poids pour le copolymère de MMA.

[038] En ce qui concerne la composition selon l'invention, celle-ci comprend un polymère (méth)acrylique AP1, des particules de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm et des particules de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm , caractérisée en ce que la particule PP1 représente

entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c). Les rapports en poids des particules de composant b) et c) sont calculées sur la base de la somme des trois composants a), b) et c).

[039] En ce qui concerne le polymère (méth)acrylique AP1, celui-ci est une chaîne de polymère comprenant au moins 50 % en poids de monomères provenant de monomères acryliques et/ou méthacryliques. Le polymère (méth)acrylique peut également être un mélange de deux polymères (méth)acryliques AP1 à APx ou plus.

[040] Les monomères acryliques et/ou méthacryliques sont choisis parmi l'acide acrylique, l'acide méthacrylique, des esters d'acide acrylique, des esters d'acide méthacrylique, des monomères acryliques d'alkyle, des monomères méthacryliques d'alkyle et des mélanges de ceux-ci.

[041] De préférence, le monomère est choisi parmi l'acide acrylique, l'acide méthacrylique, des monomères acryliques d'alkyle, des monomères méthacryliques d'alkyle et leurs mélanges, le groupe alkyle contenant de 1 à 22 carbones, linéaires, ramifiés ou cycliques ; le groupe alkyle contenant de préférence 1 à 12 carbones, linéaires, ramifiés ou cycliques.

[042] Avantagement, le monomère (méth)acrylique est choisi parmi le méthacrylate de méthyle, le méthacrylate d'éthyle, l'acrylate de méthyle, l'acrylate d'éthyle, l'acide méthacrylique, l'acide acrylique, l'acrylate de n-butyle, l'acrylate d'iso-butyle, le méthacrylate de n-butyle, le méthacrylate d'iso-butyle, l'acrylate de cyclohexyle, le méthacrylate de cyclohexyle, l'acrylate d'isobornyle, le méthacrylate d'isobornyle et des mélanges de ceux-ci.

[043] D'autres comonomères peuvent être copolymérisés avec les monomères acryliques et/ou méthacryliques dans la mesure où le polymère (méth)acrylique AP1 comprend au moins 50 % en poids de monomères provenant de monomères acryliques et/ou méthacryliques dans sa chaîne de polymère. Les autres comonomères peuvent être choisis parmi des monomères styréniques tels que le styrène ou des

dérivés de styrène, l'acrylonitrile, des esters vinyliques tels que l'acétate de vinyle. La quantité de ces comonomères est de 0 % en poids à 50 % en poids, de préférence de 0 % en poids à 40 % en poids, plus préférentiellement de 0 % en poids à 30 % en poids, avantageusement de 0 % en poids à 20 % en poids.

5 **[044]** Dans un premier mode de réalisation préféré, le polymère (méth)acrylique AP1 est un homo- ou copolymère de méthacrylate de méthyle (MMA) qui comprend au moins 50 %, de préférence au moins 60 %, avantageusement au moins 70 % et plus avantageusement au moins 10 80 % en poids de méthacrylate de méthyle.

[045] Le copolymère de méthacrylate de méthyle (MMA) comprend entre 50 % et 99,9 % en poids de méthacrylate de méthyle et entre 0,1 et 50 % en poids d'au moins un monomère ayant au moins une insaturation éthylénique qui peut être copolymérisé avec le méthacrylate de 15 méthyle.

[046] Ces monomères sont bien connus, et on peut notamment mentionner les acides acrylique et méthacrylique et les (méth)acrylates d'alkyle dans lesquels le groupe alkyle contient de 1 à 12 atomes de carbone. En tant qu'exemples, on peut mentionner l'acrylate de 20 méthyle et le (méth)acrylate d'éthyle, de butyle ou de 2-éthylhexyle. De préférence, le comonomère est un acrylate d'alkyle dans lequel le groupe alkyle contient de 1 à 4 atomes de carbone.

[047] Selon le premier mode de réalisation préféré, le copolymère de méthacrylate de méthyle (MMA) comprend de 80 % à 99,8 %, 25 avantageusement de 90 % à 99,7 % et plus avantageusement de 90 % à 99,5 % en poids de méthacrylate de méthyle, et de 0,2 % à 20 %, avantageusement de 0,3 % à 10 % et plus avantageusement de 0,5 % à 10 % en poids d'au moins un monomère contenant au moins une insaturation éthylénique qui peut être copolymérisée avec le 30 méthacrylate de méthyle. De préférence, le comonomère est choisi parmi l'acrylate de méthyle ou l'acrylate d'éthyle ou leurs mélanges.

[048] Le polymère (méth)acrylique AP1 possède un indice de fluage (MFI) selon l'ISO 1133 (230 °C/3,8 kg) entre 0,1 g et 20 g/10 min. 35 De préférence, l'indice de fluage est compris entre 0,2 g et 18 g/10 min, plus préférentiellement entre 0,3 g et 16 g/10 min, avantageusement entre 0,4 g et 13 g/10 min.

[049] Le polymère (méth)acrylique AP1 possède un indice de réfraction compris entre 1,46 et 1,52, de préférence entre 1,47 et 1,52 et plus préférablement entre 1,48 et 1,52.

5 [050] Le polymère (méth)acrylique AP1 présente une transmittance optique selon l'ASTM D-1003 (feuille de 3 mm d'épaisseur) d'au moins 85 %, de préférence 86 %, plus préférablement 87 %.

[051] Le polymère (méth)acrylique AP1 a une température de ramollissement Vicat d'au moins 90 °C. La température de ramollissement Vicat est mesurée selon l'ISO 306:2013 (procédé B50).

10 [052] La composition selon l'invention peut comprendre en outre, hormis le polymère (méth)acrylique AP1, un polymère (méth)acrylique AP2. Le polymère (méth)acrylique AP1 et le polymère (méth)acrylique AP2 forment un mélange ou une formulation. Ce mélange ou cette formulation est constitué d'au moins un homopolymère et d'au moins
15 un copolymère de MMA, ou un mélange d'au moins deux homopolymères ou deux copolymères de MMA ayant un poids moléculaire moyen différent, ou un mélange d'au moins deux copolymères de MMA ayant une composition de monomères différente.

20 [053] En ce qui concerne la particule de polymère de silicone PP1, celle-ci a un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 10 µm, les particules comprennent des chaînes de polysiloxane ayant une chaîne de squelette de silicone inorganique-oxygène.

25 [054] La particule de polymère de silicone PP1 possède un indice de réfraction compris entre 1,30 et 1,45, de préférence entre 1,35 et 1,45, avantageusement entre 1,36 et 1,44.

[055] Le diamètre de particule moyen en poids de la particule de polymère de silicone PP1 est de préférence entre 1 µm et 9 µm, plus
30 préférablement entre 1 µm et 8 µm, encore plus préférablement entre 1 µm et 7 µm, encore plus préférablement entre 1 µm et 6 µm, avantageusement entre 1 µm et 5 µm et plus avantageusement entre 1 µm et 4 µm.

[056] La masse volumique apparente d'une poudre de la particule de
35 polymère de silicone PP1 est comprise entre 0,1 et 0,5 g/ml, de préférence entre 0,15 et 0,45 g/ml.

[057] La particule de polymère de silicone PP1 peut, par exemple, être préparée selon US 2008/124549.

[058] La particule de polymère de silicone peut également être un mélange de deux particules de silicone différentes ou plus PP1a, PP1b..., dans la mesure où toutes les particules de silicone présentent les caractéristiques précédemment mentionnées.

[059] En ce qui concerne la particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm , celle-ci comprend au moins 50 % en poids de monomères provenant de monomères acryliques et/ou méthacryliques dans les chaînes de polymère de la particule de polymère PP2.

[060] Dans un premier mode de réalisation préféré, la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est un homo- ou copolymère de méthacrylate de méthyle (MMA) qui comprend au moins 50 %, de préférence au moins 60 %, avantageusement au moins 65 % et plus avantageusement au moins 70 % en poids de méthacrylate de méthyle.

[061] Le diamètre de particule moyen en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est de préférence compris entre 35 μm et 90 μm , plus préférentiellement entre 35 μm et 60 μm .

[062] De préférence, la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est réticulée. Le rapport en poids de l'agent de réticulation dans la particule (méth)acrylique PP2 est inférieur à 5 % en poids. L'agent de réticulation est de préférence choisi parmi un composé organique ayant au moins une fonction acrylique ou méthacrylique et une deuxième double liaison qui peut également être polymérisée.

[063] La particule de polymère (méth)acrylique PP2 possède un indice de réfraction compris entre 1,49 et 1,56, de préférence entre 1,50 et 1,55.

[064] La particule de polymère (méth)acrylique PP2 peut être préparée selon une polymérisation en suspension.

[065] La particule de polymère (méth)acrylique peut également être un mélange de deux particules (méth)acryliques différentes ou plus, PP2a, PP2b..., dans la mesure où toutes les particules de silicone présentent les caractéristiques précédemment mentionnées.

[066] En ce qui concerne le procédé de préparation d'une composition de polymère selon l'invention, celui-ci comprend l'étape de mélange des composants a), b) et c).

[067] De préférence, le procédé est conduit par malaxage.

5 **[068]** Ledit procédé permet en outre la préparation d'une composition de polymère adaptée pour fabriquer des objets avec ladite composition.

[069] De préférence, le procédé de préparation d'une composition de polymère adaptée en pour fabriquer des objets moulés comprend en
10 outre au moins une des étapes suivantes

- mélange de a) le polymère (méth)acrylique AP1 avec b) la particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm ;

15 - mélange d'une composition comprenant a) le polymère (méth)acrylique AP1 et b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm avec c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ;

20 - le mélange d'une composition comprenant a) un polymère (méth)acrylique AP1 et b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm et c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en
25 poids compris entre 30 μm et 100 μm avec une quantité additionnelle de polymère (méth)acrylique AP1 ou d'un polymère (méth)acrylique AP2 ;

[070] Le rapport en poids entre la particule de silicone PP1 et la
30 particule de polymère (méth)acrylique PP2 dans la composition est choisi de sorte que la particule de polymère (méth)acrylique PP2 soit toujours en excès.

[071] De préférence le rapport en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 à particule de silicone PP1 est au moins 2/1,
35 plus préféablement 5/2 et encore plus préféablement au moins 10/1.

[072] Selon l'invention, le rapport en poids des particules de silicone PP1 dans la composition est moins important que le rapport

en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2. Dans la composition de polymère, le poids absolu des particules de silicone PP1 est minoritaire par rapport à la particule de polymère (méth)acrylique PP2.

5 [073] Selon l'invention le rapport en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 in la composition est plus important que le rapport en poids des particules de silicone PP1. Dans la composition de polymère, le poids absolu de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est en excès par rapport aux particules de
10 silicone PP1.

[074] La particule de polymère (méth)acrylique PP2 de la composition selon l'invention présente une quantité en excès en % en poids dans la composition qui est au moins deux fois la quantité des particules de silicone PP1. La particule de polymère (méth)acrylique PP2 de la
15 composition selon l'invention présente une quantité en excès en % en poids dans la composition qui est au plus quatre cents fois la quantité des particules de silicone PP1.

[075] Le diamètre de particule moyen en poids de la particule de
20 polymère (méth)acrylique PP2 dans la composition est plus important que le diamètre de particule moyen en poids de la particule de silicone PP1. La particule de polymère (méth)acrylique PP2 de la composition selon l'invention a un diamètre de particule moyen en poids qui est au moins trois fois plus important que le diamètre de
25 particule moyen en poids des particules de silicone PP1. De préférence, le diamètre de particule moyen en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est au moins cinq fois plus important, plus préférentiellement dix fois plus important que le diamètre de particule moyen en poids des particules de silicone PP1.

30 [076] La particule de polymère (méth)acrylique PP2 de la composition selon l'invention a un diamètre de particule moyen en poids qui est au plus cent fois plus important que le diamètre moyen en poids des particules de silicone PP1. De préférence, le diamètre de particule moyen en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est
35 au plus quatre-vingt fois plus important, plus préférentiellement cinquante fois plus important que le diamètre de particule moyen en poids des particules de silicone PP1.

[077] L'indice de réfraction de particules de silicone PP1 est moins important que l'indice de réfraction du polymère (méth)acrylique AP1 de la composition selon l'invention. De préférence, la différence d'indice de réfraction entre le polymère (méth)acrylique AP1 et les particules de silicone PP1 est d'au moins 0,01, plus préférablement d'au moins 0,02 et encore plus préférablement de 0,03.

[078] L'indice de réfraction de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est plus important que l'indice de réfraction du polymère (méth)acrylique AP1 de la composition selon l'invention. De préférence la différence d'indice de réfraction entre la particule de polymère (méth)acrylique PP2 et le polymère (méth)acrylique AP1 est d'au moins 0,005, plus préférablement d'au moins 0,01 et encore plus préférablement 0,015.

[079] De préférence, dans la composition selon l'invention, l'indice de réfraction de particules de silicone PP1 est moins important que l'indice de réfraction du polymère (méth)acrylique AP1 et l'indice de réfraction de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 est plus important que l'indice de réfraction du polymère (méth)acrylique AP1.

[080] Selon un autre aspect, la présente invention concerne un procédé de fabrication d'un objet par transformation et/ou traitement de la composition de polymère selon l'invention.

[081] La transformation peut être effectuée par moulage par injection, extrusion, coextrusion ou moulage par extrusion/soufflage. De préférence, la transformation est effectuée par moulage par injection ou par extrusion.

[082] Dans un premier mode de réalisation préféré du procédé de fabrication, un objet est fabriqué par moulage par injection. Un objet moulé est obtenu.

[083] Le procédé de fabrication d'un objet moulé selon l'invention comprend les étapes de

- fusion de la composition comprenant le polymère (méth)acrylique AP1, particules de silicone PP1 et la particule de polymère (méth)acrylique PP2,
- injection de la composition fondue dans un moule,

- application d'une pression sur le moule au moins jusqu'à ce que le moule soit complètement rempli avec la composition fondue.

5 [084] Le plus avantageusement, l'indice de fluage du polymère (méth)acrylique AP1 dans ce premier mode de réalisation préféré du procédé de fabrication d'un objet est compris entre 1,5 g et 13 g/10 min.

10 [085] Dans un deuxième mode de réalisation préféré du procédé de fabrication d'un objet, le procédé de transformation est conduit par extrusion.

[086] Le procédé de fabrication d'un objet selon l'invention comprend les étapes de

15 - alimentation de la composition de polymère comprenant le polymère (méth)acrylique AP1, les particules de silicone PP1 et ma particule de polymère (méth)acrylique PP2 dans une extrudeuse,

- fusion de la composition comprenant un copolymère (méth)acrylique dans l'extrudeuse,

- extrusion de la composition fondue.

20 [087] L'objet obtenu par extrusion possède une certaine rugosité de surface.

[088] Le plus avantageusement, l'indice de fluage du polymère (méth)acrylique AP1 dans ce deuxième mode de réalisation préféré du procédé de fabrication d'un objet est compris entre 0,5 g et 25 13 g/10 min.

[089] Selon un autre aspect supplémentaire la présente invention concerne l'utilisation de la composition pour fabriquer un objet ou un objet moulé.

30 [090] La composition selon l'invention peut être utilisée pour fabriquer un objet ou un objet moulé ou un article ou être utilisée pour faire partie d'un article.

[091] La composition obtenue par le procédé selon l'invention peut être utilisée pour être transformée directement en article ou objet 35 ou peut faire partie d'un article ou objet.

[092] Selon un autre aspect supplémentaire, la présente invention concerne un objet ou un objet moulé constitué de la composition de polymère selon la présente invention.

5 [093] L'objet ou objet moulé de l'invention peut être sous la forme d'une feuille, un bloc, un film, un tube ou un élément profilé. De préférence, l'objet moulé est une feuille, qui peut être simple ou légèrement fléchie ou courbée.

[094] Des exemples d'objet ou d'objets moulés ou d'articles sont des couvertures ou des plaques pour des dispositifs lumineux.

10 [095] Dans un mode de réalisation, l'objet moulé est une couverture pour une source de lumière. La couverture a généralement une épaisseur comprise entre 0,001 et 15 cm, de préférence entre 0,01 et 10 cm, plus préférentiellement entre 0,05 et 7 cm, plus préférentiellement entre 0,1 et 5 cm et encore plus préférentiellement entre
15 0,2 et 4 cm.

[096] De plus, selon un autre aspect de la présente invention, la composition selon l'invention peut être utilisée en tant que
20 lumière avec la couverture forme un dispositif lumineux. La couverture peut être une monocouche, ou peut être une structure multicouche. La couverture est séparée de la source de lumière d'une distance comprise entre 0,11 et 50 cm, de préférence entre 1 et 40 cm, de préférence entre 2 et 20 cm et encore plus préférentiellement
25 entre 3 et 20 cm.

[097] Le dispositif lumineux selon l'invention possède différentes applications telles que, par exemple :

- l'éclairage intérieur (lampes de salon, lampes de bureau, etc.) ;
- 30 - les affichages publicitaires ;
- les signaux lumineux (dans ce cas, la couverture peut avoir particulièrement la forme d'une lettre, d'un nombre, d'un symbole ou d'un autre signe quelconque) ;
- l'éclairage industriel ;
- 35 - l'éclairage extérieur ; et
- l'éclairage automobile (par exemple, le dispositif lumineux peut être un phare, un feu de position, un clignotant, un feu

de stop, un phare antibrouillard, un feu de marche arrière, etc.).

[Méthodes]

5 **[098]** Les propriétés optiques des polymères sont mesurées selon le procédé suivant : la transmittance optique et le trouble sont mesurés selon la norme ASTM D1003, sur des feuilles de 2 mm d'épaisseur pour des échantillons moulés. Un appareil Haze-Gard Plus de BYK-Gardner est utilisé.

10 **[099]** L'indice de réfraction est mesuré avec un réfractomètre.

[0100] Taille de particule : mesurée par diffraction laser avec un Coulter Counter.

[Exemples]

15 **[0101]** La particule de silicone PP1 est l'additif 30-424 de Dow Corning. Le diamètre de particule moyen en poids est compris entre 1 μm et 3 μm .

[0102] En tant que particule de polymère (méth)acrylique PP2 dans les exemples, il est utilisé un produit commercial d'ALTUGLAS BS110 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 35 μm et 60 μm .

20 **[0103]** La particule de polymère PP3 est un modificateur optique, Paraloid EXL 5137 de Röhm et Haas, qui est utilisé conformément à sa fiche technique pour réduire le brillant et augmenter l'opalescence. Le diamètre de particule moyen en poids est compris

25 entre 5 μm et 10 μm .

[0104] Exemples :

[0105] Un copolymère de méthacrylate de méthyle ayant un indice de fluage de 8 g/10 min est utilisé en tant que polymère (méth)acrylique AP1 et des particules de silicone PP1 et une

30 particule de polymère (méth)acrylique PP2 sont mélangées avec le polymère (méth)acrylique AP1. Le mélange est effectué par malaxage avec une extrudeuse à deux vis.

[0106] Exemples comparatifs :

35 **[0107]** Les compositions sont préparées comme pour les exemples avec le même polymère (méth)acrylique AP1. Cependant, les exemples comparatifs comprennent un seul type de particule ou deux types de

particule ayant une taille de particule en dehors de la plage revendiquée.

[0108] L'ensemble des compositions des exemples et des exemples comparatifs sont résumées dans le tableau 1.

5

[0109] Tableau 1 - Compositions de polymère (méth)acrylique AP1 avec des particules respectives

	particule de silicone PP1 / [% en poids]	particule de polymère (méth)acrylique PP2 / [% en poids]	particule de polymère PP3 / [% en poids]
Exemple 1	0,2	13,5	-
Exemple 2	0,2	8,1	-
Exemple 3	0,2	5,0	-
Exemple comparatif 1	0,2	-	-
Exemple comparatif 2	0,1	-	-
Exemple comparatif 3	0,3	-	-
Exemple comparatif 4	0,4	-	-
Exemple comparatif 5	-	18,0	-
Exemple comparatif 6	-	13,0	5

[0110] Les compositions des échantillons respectifs sont transformées en feuilles ayant une épaisseur de 2 mm.

10

[0111] Table 2 - Évaluation de feuilles

	Trouble [%]	T0 a) [%]	T1 b)	T2 c)	RDP1 d)	RDP2 e)
Exemple 1	100	89,5	42,2	17,0	0,53	0,81
Exemple 2	100	90,1	45,3	20,1	0,50	0,78
Exemple 3	100	91,4	48,7	22,5	0,47	0,75
Exemple comparatif 1	97	92,5	51,5	26,7	0,44	0,71
Exemple comparatif 2	79	93,2	70,7	49,0	0,24	0,47

	[mm]	[%]						
Exemple 1	2,15	100	85,0	27,5	10,3	0,68	0,88	7,0
Exemple comparatif 3	2,30	100	87,6	32,6	13,5	0,63	0,85	78,0
Exemple comparatif 5	2,30	100	89,0	36,0	14,8	0,60	0,83	8,0
Exemple comparatif 6	2,25	100	85,0	29,7	11,2	0,65	0,87	9,5

a) T0 Transmission de lumière à la distance 0 entre l'échantillon et l'entrée de sphère

b) T1 Transmission de lumière à une distance de 1 pouce (2,54 cm) entre l'échantillon et l'entrée de sphère

5 c) T2 Transmission de lumière à une distance de 2 pouces (5,08 cm) entre l'échantillon et l'entrée de sphère

d) RDP1 - pouvoir diffusant relatif 1 $RPD1=1-(T1/T0)$

e) RDP2 - pouvoir diffusant relatif 2 $RPD2=1-(T2/T0)$

10 **[0115]** L'échantillon extrudé comprenant des particules de silicone PP1 et des particules de polymère (méth)acrylique PP2 présentent un bon compromis entre l'ensemble des caractéristiques, un trouble de 100 %, une transmission T0 proche de 85 %, un bon pouvoir diffusant relatif et un très faible brillant.

Revendications

1. Composition de polymère comprenant :
- 5 a) un polymère (méth)acrylique AP1
b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm
c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et
10 100 μm ,
- caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule PP2 représente entre
15 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c).
2. Composition de polymère selon la revendication 1 caractérisée en ce que la particule de polymère de silicone PP1 possède un indice de réfraction compris entre 1,30 et 1,45, de préférence entre
20 1,35 et 1,45, avantageusement entre 1,36 et 1,44.
3. Composition de polymère selon la revendication 1 ou 2, caractérisée en ce que la particule de polymère de silicone PP1 présente un diamètre de particule moyen en poids compris entre
25 1 μm et 9 μm , plus préférentiellement entre 1 μm et 8 μm , encore plus préférentiellement entre 1 μm et 7 μm , encore plus préférentiellement entre 1 μm et 6 μm , avantageusement entre 1 μm et 5 μm et plus avantageusement entre 1 μm et 4 μm .
- 30 4. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisée en ce que la particule de polymère (méth)acrylique PP2 comprend au moins 50 % en poids de monomères provenant de monomères acryliques et/ou méthacryliques dans les chaînes de polymère de la particule de polymère PP2.
- 35 5. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisée en ce que la particule de

polymère (méth)acrylique PP2 présente un diamètre de particule moyen en poids de préférence compris entre 35 μm et 90 μm , plus préférentiellement entre 35 μm et 60 μm .

- 5 6. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que le polymère (méth)acrylique AP1 comprend au moins 50 % en poids de monomères provenant de monomères acryliques et/ou méthacryliques.
- 10 7. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que le polymère (méth)acrylique AP1 est un homo- ou copolymère de méthacrylate de méthyle (MMA) qui comprend au moins 50 %, de préférence au moins 60 %, avantageusement au moins 70 % et plus
15 avantageusement au moins 80 % en poids de méthacrylate de méthyle.
8. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que le rapport en poids
20 entre la particule de silicone PP1 et la particule de polymère (méth)acrylique PP2 dans la composition est choisi de sorte que la particule de polymère (méth)acrylique PP2 soit toujours en excès.
- 25 9. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que le rapport en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 à la particule de silicone PP1 est au moins 2/1, plus préférentiellement 5/2 et encore plus préférentiellement au moins 10/1.
- 30 10. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que la quantité de la particule de polymère (méth)acrylique PP2 de la composition de polymère en % en poids dans la composition est au plus quatre
35 cents fois la quantité des particules de silicone PP1.
11. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que le diamètre de

particule moyen en poids de particule de polymère (méth)acrylique PP2 est au moins cinq fois plus important, plus préférablement dix fois plus important que le diamètre de particule moyen en poids des particules de silicone PP1.

5

12. Composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que le diamètre de particule moyen en poids de particule de polymère (méth)acrylique PP2 est au plus quatre-vingt fois plus important, plus préférablement cinquante fois plus important que le diamètre de particule moyen en poids des particules de silicone PP1.

10

13. Procédé de préparation d'une composition de polymère comprenant

15 a) un polymère (méth)acrylique AP1
b) une particule de polymère de silicone PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 μm et 10 μm
c) une particule de polymère (méth)acrylique PP2 ayant

20 un diamètre de particule moyen en poids compris entre 30 μm et 100 μm ,
caractérisée en ce que la particule PP1 représente entre 0,05 % en poids et 2 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) et que la particule

25 PP2 représente entre 5 % en poids et 20 % en poids de la composition comprenant les composants a), b) et c) ;
caractérisé en ce que ledit procédé comprend l'étape de mélange des composants a), b) et c).

25

30 14. Procédé selon la revendication 13, caractérisé en ce que le mélange est effectué par malaxage.

35

15. Procédé de fabrication d'un objet par transformation et/ou traitement de la composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 12.

16. Procédé selon la revendication 15, caractérisé en ce que le procédé est conduit par extrusion.

17. Objet comprenant la composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 12 ou constitué de la composition de polymère selon l'une quelconque des revendications 1 à 12.
- 5
18. Objet selon la revendication 17, caractérisé en ce que l'objet est un dispositif lumineux.
- 10 19. Utilisation de la composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 12 ou obtenue par un procédé selon l'une quelconque des revendications 13 à 16, pour fabriquer un objet.
- 15 20. Utilisation de la composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 12 ou obtenue par un procédé selon l'une quelconque des revendications 13 à 16, pour recouvrir une source de lumière ponctuelle.



**RAPPORT DE RECHERCHE
PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement
national

FA 831926
FR 1657403

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X	DATABASE WPI Week 198949 1989 Thomson Scientific, London, GB; AN 1989-360379 XP002770655, & JP H01 269902 A (ASAHI CHEM IND CO LTD) 27 octobre 1989 (1989-10-27)	1-16	C08L33/00 C08L33/12 C08K7/16 B29C47/00 F21V3/04 F21Y101/00
Y	* abrégé *	17-20	
Y,D	----- US 5 831 774 A (TOSHIMA YASUMARO [JP] ET AL) 3 novembre 1998 (1998-11-03)	17-20	
A	* colonne 3, ligne 12 - ligne 35 * * tableaux 1-2 * -----	16	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC)
			G02B C08L
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
29 juin 2017		Parry, Julian	
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS		T : théorie ou principe à la base de l'invention	
X : particulièrement pertinent à lui seul		E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure	
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un		à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date	
autre document de la même catégorie		de dépôt ou qu'à une date postérieure.	
A : arrière-plan technologique		D : cité dans la demande	
O : divulgation non-écrite		L : cité pour d'autres raisons	
P : document intercalaire		
		& : membre de la même famille, document correspondant	

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 1657403 FA 831926**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.

Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du **29-06-2017**

Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
JP H01269902	A	27-10-1989	AUCUN	

US 5831774	A	03-11-1998	JP 3727094 B2	14-12-2005
			JP H09197109 A	31-07-1997
			US 5831774 A	03-11-1998
