RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

(11) N° de publication : **2 484 904**
(A n'utiliser que pour les commandes de reproduction).

A1

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

(21) **N° 81 12106**

(54) **Film de polypropylène biaxialement orienté et méthode pour sa production.**

(51) Classification internationale (Int. Cl.³). **B 29 D 7/24, 7/02; C 08 J 5/18 // C 08 F 110/06.**

(22) Date de dépôt..... 19 juin 1981.

(33) (32) (31) Priorité revendiquée : *Japon, 20 juin 1980, n° 55-82713.*

(41) Date de la mise à la disposition du public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 52 du 24-12-1981.

(71) Déposant : MITSUBISHI PETROCHEMICAL COMPANY LIMITED, résidant au Japon.

(72) Invention de : Fukashi Hashimoto.

(73) Titulaire : *Idem* (71)

(74) Mandataire : Marc-Roger Hirsch, conseil en brevets, 34, rue de Bassano, 75008 Paris.

FILM DE POLYPROPYLENE BIAXIALEMENT ORIENTE ET METHODE POUR SA PRODUCTION.

La présente invention concerne un film de polypropylène orienté selon deux axes ainsi qu'un procédé pour le produire, grâce auquel la rigidité du polypropylène biaxialement orienté est améliorée.

Le polypropylène orienté selon deux axes sert de matériau d'emballage ou de matière industrielle en raison de ses excellentes qualités de transparence, de résistance au passage de l'humidité et de sa bonne aptitude à être travaillé, etc. Cependant, lorsqu'on le compare à la Cellophane®, dénomination commerciale d'un hydrate de cellulose façonné en pellicule transparente, qui concurrence le polypropylène biaxialement orienté, ce dernier lui est inférieur du point de vue de la rigidité, si bien qu'il ne constitue pas toujours un matériau parfait.

En améliorant la rigidité d'un film de polypropylène biaxialement orienté, on peut disposer d'un produit rigide et fin, de telle sorte que son coût peut être réduit. De plus, un tel film de polypropylène amélioré biaxialement orienté peut devenir un matériau plus intéressant pour des machines à imprimer ou à conditionner, etc. En conséquence, on s'est intéressé dans cette industrie à améliorer la rigidité du film de polypropylène biaxialement orienté.

Des méthodes classiques permettant l'amélioration de la rigidité du film de polypropylène biaxialement orienté sont maintenant décrites rapidement. Chacune de celles-ci implique un procédé ultérieur d'orientation biaxiale du film de polypropylène.

Selon la publication de brevet japonais examiné No. 34-5887, le film de polypropylène biaxialement orienté est encore orienté dans la direction longitudinale.

Selon la publication de brevet japonais examiné No. 49-18628, le film est encore étiré dans la direction longitudinale sur une longue distance.

Selon la publication de brevet japonais examiné No. 46-9677, le film de polypropylène est encore étiré dans la direction longitudinale au cours d'un procédé à double étage.

De plus, selon les publications de brevets japonais examinés Numéros 43-26110, 54-61269 et 54-66978, le film est étiré dans la direction longitudinale, puis étiré biaxialement en même temps.

Cependant, l'une quelconque de ces techniques classiques nécessite un dispositif plus important s'ajoutant à l'équipement existant, et un plus grand espace pour celui-ci, et implique donc un certain coût. De plus, le film de polypropylène biaxialement orienté, obtenu à l'aide de chacune des techniques classiques ci-dessus, présente une propriété améliorée dans la direction longitudinale, mais cette propriété est nettement réduite dans la direction latérale. Enfin, cela provoque un certain déséquilibre entre la rigidité longitudinale et la rigidité latérale, si bien que la stabilité du film est détruite. Afin d'éliminer ces inconvénients de l'art antérieur, la présente invention a été mise au point.

La présente invention a pour objet de fournir un procédé de production d'un film de polypropylène biaxialement orienté selon lequel l'étirage longitudinal réalisé avant l'étirage latéral est effectué à l'aide d'un procédé comprenant au moins deux étages, tandis qu'il n'en comprend qu'un seul dans les procédés antérieurs.

De préférence, le film de polypropylène est étiré dans le premier étage d'étirage longitudinal d'au moins 50 à 90% de son étirage longitudinal global. De plus, l'étirage longitudinal est effectué de préférence en deux ou trois étapes. De plus, la température du film régnant dans chaque étage d'étirage longitudinal est équivalente ou supérieure à celle qui existe dans l'étage précédent d'étirage longitudinal. Enfin, la méthode selon l'invention est caractérisée en ce que l'indice isotactique du polypropylène obtenu n'est pas inférieur à 98,0%.

La présente invention a pour autre objet de fournir un nouveau film de polypropylène biaxialement orienté qui peut être produit selon la méthode précédente, et présente un indice de réfraction élevé dans les directions longitudinale, latérale et dans l'épaisseur, ainsi qu'une excellente rigidité.

Tous ces objets et avantages de l'invention seront apparents à l'aide de la description suivante.

Un procédé de production de film de polypropylène biaxialement orienté selon l'invention est maintenant décrit en détail.

Le procédé de l'invention comprend:

- une étape de chauffage et de fusion de résine de polypropylène par un extrudeur et extrusion de celle-ci en forme de feuille à l'aide d'une filière de type T,
- une étape de refroidissement et de solidification d'un film de polypropylène ainsi formé sur un cylindre de refroidissement,

— une étape de préchauffage de ce film à une température comprise entre 100 et 150°C au moyen d'un groupe de cylindres de préchauffage,
— une étape d'étirage de celui-ci d'environ 4,5 à 5,5 fois dans la direction longitudinale par utilisation d'une différence de vitesse tangentielle des cylindres de préchauffage,
— une étape de préchauffage du film dans un four à une température comprise entre 150 et 200°C et, enfin,
— une étape d'étirage d'environ 8 à 10,5 fois dans la direction latérale,

et ce procédé est caractérisé en ce que l'étirage longitudinal du film de polypropylène est réalisé au cours d'un procédé à deux étages.

Le facteur de grandissement de l'étirage longitudinal global est compris entre 4 et 15 fois et, de préférence, 6 et 14 fois.

Si ce grandissement est inférieur à 4 fois, on n'observe aucun effet remarquable, et s'il dépasse 15 fois, la stabilité du film lors de l'étirage latéral consécutif est détruite. De plus, dans le premier étage de l'étirage du film en direction longitudinale, cet étirage est de préférence de 50 à 90% et, plus avantageusement, de 55 à 80% de l'étirage longitudinal global. L'étirage longitudinal est réalisé en 2 à 5 étages afin de maintenir la qualité et, de préférence, en 2 à 3 étages. La température du film régnant dans chaque étage de l'étirage longitudinal est égale ou supérieure de 3 à 10°C à celle qui existe dans l'étage antérieur de l'étirage longitudinal; les températures sont normalement de 100 à 135°C et, de préférence, de 115 à 135°C.
En général, la température du film existant dans chaque étage de l'étirage longitudinal est de 110 à 160°C et, de préférence, de 115 à 150°C.
En particulier, la température du film existant dans le dernier étage de l'étirage longitudinal est comprise entre 130 et 160°C et, de préférence, entre 115 et 135°C. Le facteur de grandissement dans chaque étage de l'étirage longitudinal est ajusté par une différence de vitesse tangentielle des cylindres multiples se trouvant dans une machine à étirer dans la direction longitudinale.

Le facteur de grandissement de l'étirage latéral du film est généralement compris entre 8 et 10 fois, mais il peut être compris entre 8 et 15 fois. De préférence, il est compris entre 9 et 15 fois et, plus particulièrement, entre 11 et 15 fois.

L'étirage latéral du film est généralement réalisé à l'aide d'un élargisseur et son facteur de grandissement est ajusté par modification de la largeur de cet élargisseur.

Le polypropylène qui est utilisé dans le cadre de l'invention peut être l'un quelconque qui se trouve sur le marché et qui présente de préférence un

indice isotactique de 98,0% ou plus, tel que mesuré selon la norme ISO R 922-1969. Plus particulièrement, l'indice isotactique est compris entre 98,5 et 99,5%. En définissant ainsi l'indice isotactique, on peut encore améliorer le taux de retrait thermique du film biaxialement orienté.

Le film de polyéthylène biaxialement orienté obtenu selon la méthode de l'invention est caractérisé en ce qu'il présente un indice de réfraction Nx dans la direction longitudinale, à une température de 20°C, supérieur à 1,5040 et un indice de réfraction Ny dans la direction latérale mesuré à la même température qui n'est pas inférieur à 1,5120, si bien que la somme de ces indices ne soit pas inférieure à 3,023. Lorsque les deux indices de réfraction Nx et Ny et l'indice de réfraction Nz déterminés selon la direction de l'épaisseur, sont fixés à des valeurs supérieures à 1,5150, 1,5250 et 1,5025 respectivement, il devient difficile de produire le polypropylène biaxialement orienté selon l'invention. Une limite inférieure de l'indice de réfraction Nz est de préférence de 1,4970 afin de maintenir une rigidité et une transparence. En conséquence, un indice de réfraction plus avantageux du film de polypropylène biaxialement orienté est de 1,5050 à 1,5130 pour Nx et de 1,5130 à 1,5240 pour Ny, si bien que la somme des indices Nx et Ny est comprise entre 3,0240 et 3,0310, Nz étant compris entre 1,4970 et 1,5020. De plus, la valeur moyenne des indices de réfraction Nx, Ny, Nz est de préférence comprise dans la gamme suivante:

$$1{,}5070 \leq \frac{Nx + Ny + Nz}{3} \leq 1{,}5120$$

et de préférence encore, $1{,}5070 \leq \frac{Nx + Ny + Nz}{3} \leq 1{,}5110$.

De plus, l'épaisseur du film de polypropylène ainsi biaxialement orienté est comprise entre 4 et 150 microns et, de préférence, entre 15 et 100 microns.

Des exemples préférés selon l'invention seront maintenant décrits par rapport à des exemples de comparaison.

Le module d'Young, l'indice de réfraction, le taux de retrait thermique et l'indice isotactique du polypropylène biaxialement orienté préparé selon la présente invention sont déterminés par les méthodes suivantes.

- (1) Module d'Young:

Une éprouvette de 300 mm de longueur et 15 mm de largeur est conditionnée à une température de 21 à 23°C pendant 24 heures. Elle est ensuite saisie par deux moyens de fixation d'un appareil à essai à la traction de type Instron. ("Instron-type Tensile Tester") distant de 250 mm, puis soumise à une traction à la vitesse de 2,5 mm par minute.

On enregistre ensuite par un appareil la courbe de tension obtenue par application de charge. A partir de la pente initiale de la courbe ainsi enregistrée, on en déduit le rapport:

$$\frac{\text{tension de traction (kg/cm}^3\text{)}}{\text{taux de tension (cm/cm)}}$$

(Selon la Norme ISO R 1184 établie en 1970).

• (2) Indice de Réfraction:

On monte l'échantillon d'essai en faisant correspondre sa direction longitudinale avec la direction gauche à droite d'un axe optique d'un réfractomètre Abbé. Ensuite, on établit un contact étroit entre l'échantillon d'essai et un prisme du réfractomètre Abbé en faisant couler quelques gouttes d'alcool benzylique entre ceux-ci.

Ensuite, on mesure l'indice de réfraction de l'échantillon d'essai d'une façon normale en regardant à travers un filtre polaroid à partir d'un oculaire. Lorsque la direction du polaroid est de gauche à droite, on peut mesurer l'indice Ny de l'échantillon d'essai et l'indice de réfraction de l'alcool benzylique.En faisant tourner le filtre polaroid de 90°, on peut les mesurer.

Ensuite, on fait tourner l'échantillon d'essai de 90°, et on peut alors aussi mesurer les indices Nx, Nz et l'indice de réfraction de l'alcool benzylique. De cette façon, on mesure cinq points par échantillon d'essai et l'on retient sa valeur moyenne. La température de mesure est de 23°C.
[Voir à ce propos: "The Journal of the Society of Chemical Industry", Japon, Vol. 42, p. 810/819, en 1939].

Les symboles de l'indice de réfraction sont définis de la façon suivante:

Nx : Indice de réfraction dans la direction d'étirage longitudinal du film.

Ny : Indice de réfraction dans la direction d'étirage latéral du film.

Nz : Indice de réfraction dans la direction de l'épaisseur du film

$\bar{N} : \frac{Nx + Ny + Nz}{3}$.

• (3) Taux de retrait à chaud:

On plonge un échantillon d'essai de 100 m² orienté selon les directions longitudinale et latérale dans un bain à température constante à ± 1°C, aux températures de mesures respectives indiquées dans le Tableau V ci-après → et détermine son taux de retrait à chaud à l'aide de l'équation suivante utilisant les dimensions de l'échantillon d'essai avant et après immersion, mesuré dans les directions longitudinale et latérale.

▪ Taux de retrait à chaud (%) = $\frac{\ell o - \ell}{\ell o} \times 100$

ℓo = Longueur en mm de l'échantillon avant immersion.

ℓ = Longueur en mm de l'échantillon après immersion.

Dans cet essai, le taux de retrait thermique des cinq échantillons est mesuré pour diverses températures de mesures et la valeur moyenne est retenue.

• (4) Indice isotactique:

Un cylindre de papier filtre de 30 mm de diamètre et 120 mm de longueur est séché pendant 4 heures à la température de 60°C dans une étuve à vide et refroidi pendant une demi-heure dans un dessiccateur. Le poids alors mesuré est dénommé "A". Un échantillon d'essai S pesant de 0,49 mg à 5,1 mg est placé sur le papier filtre cylindrique et introduit dans une section extractrice d'un extracteur de Soxhlet. Ensuite, il est extrait pendant 2 heures tout en ajustant à la température de façon à obtenir un reflux de 4 à 5 fois par 10 mn, en utilisant 200 ml de n-heptane (de première qualité).
Après avoir extrait le papier filtre cylindrique, celui-ci est refroidi à l'air pendant 15 minutes, puis séché pendant environ 2 heures jusqu'à ce qu'il atteigne une température constante de 60°C dans une étuve à vide.
Après séchage, il refroidit à l'air pendant 30 mn dans un dessiccateur.
Le poids alors mesuré est dénommé "B". L'indice isotactique est obtenu par l'équation suivante:

▪ Indice isotactique (%) = $\frac{B - A}{S} \times 100.$

EXEMPLE 1

Un polypropylène cristallin portant la dénomination commerciale de "MITSUBISHI NOBLEN FL 6S" (MFR: 2,3 et un indice isotactique de 97,1%), fabriqué par "Mitsubishi Petrochemical Co., Ltd", est chauffé et fondu à une température de 245°C dans un extrudeur, puis extrudé sur un cylindre métallique refroidi à l'eau à l'aide d'une filière de type T.
Ainsi, on obtient une feuille de 1,5 mm d'épaisseur. La feuille est chauffée à une température de 120°C, étirée dans la direction de la machine, c'est-à-dire de 4,3 fois dans la direction longitudinale. Ensuite, elle est chauffée à une température de 125°C et étirée de 1,4 fois. En conséquence, elle a été globalement étirée de 6 fois dans la direction longitudinale au cours d'un procédé à deux étages. Après cela, elle est étirée de 10 fois dans la direction latérale, à 165°C, au moyen d'un étireur latéral, puis enroulée après thermodurcissement à 165°C. Les propriétés du film de polypropylène biaxialement orienté ainsi obtenu sont consignées dans le Tableau I, ci-après. →

TABLEAU I

	Voile (%)	Module de Young		Indice de réfraction			
		Orientation longitudinale	Orientation latérale	Nx	Ny	Nz	$\bar{N}$
EXEMPLE 1	1,2	27 000	50 000	1,5075	1,5165	1,4975	1,5072
Exemple 1 de comparaison	1,2	24 000	45 000	1,5042	1,5159	1,4970	1,5057
EXEMPLE 2	1,1	32 000	47 500	1,5089	1,5170	1,4988	1,5082

2484904

← Exemple de Comparaison 1 ←

Une feuille de polypropylène est préchauffée à la température de 120°C, puis elle est étirée 6 fois au cours d'une seule étape d'orientation longitudinale. Le procédé est ensuite le même que celui qui est décrit dans l'Exemple 1. Les propriétés du film de polypropylène biaxialement orienté obtenu dans cet exemple sont également consignées dans le Tableau I, ci-avant.

Ainsi qu'on le comprend d'après l'Exemple 1 et l'Exemple de Comparaison 1, lorsque l'orientation longitudinale et l'orientation latérale, respectivement, ont la même importance, on obtient un module d'Young et un indice de réfraction plus élevés lorsqu'on effectue l'étirage dans la direction longitudinale au cours d'un procédé à deux étages.

EXEMPLE 2

La feuille de polypropylène est étirée 4,5 fois à 120°C dans la première étape d'étirage longitudinal, puis 1,4 fois à 120°C dans la deuxième étape d'étirage longitudinal et, enfin, de 1,15 fois à 130°C dans une troisième étape d'étirage longitudinal. En tout, elle subit un étirage de 7,2 fois dans la direction longitudinale. Par la suite, le procédé est tel que décrit dans l'Exemple 1. Cependant, la température du four de l'élargisseur dans l'étirage latéral est de 180°C.

EXEMPLES 3-1 à 3-10 et

← Exemples de Comparaison 3-1 à 3-4 ←

Ainsi que le montre le Tableau II, ci-après, on compare dix exemples en relation avec quatre exemples de comparaison. L'importance de l'étirage longitudinal du film dans le premier et dans le deuxième étage, ainsi que les températures du film sont modifiées. De la même façon que dans l'Exemple 1, on obtient un film de polypropylène biaxialement orienté. Dans ces exemples, relativement à l'augmentation de l'importance de l'étirage longitudinal, la température du four utilisé dans l'étirage latéral est élevée graduellement de façon à ne pas provoquer une certain bris du film lors de son étirage latéral et ne pas réduire la transparence de celui-ci.

Il en résulte que le module d'Young et d'autres propriétés du film sont améliorés lorsque l'on réalise au cours du premier étage un étirage longitudinal de 50% ou plus de l'étirage global. On obtient encore une amélioration en fixant la température du film dans le second étage d'étirage longitudinal à une valeur équivalente ou supérieure à celle qui existe dans le premier étage d'étirage longitudinal.

→

TABLEAU II

	Facteur de grandissement de l'étirage			Temp. (°C) hors de l'étirage longitudinal		Temp. (°C) hors de l'étirage latéral
	1ère étape	2ème étape	Total	1ère étape	2ème étape	
EXEMPLES 3-1	3,5	2,0	7,0	120	130	180
" 2	4,5	1,4	6,3	120	120	175
" 3	4,5	1,5	6,9	130	125	175
" 4	4,5	1,4	6,3	120	130	175
" 5	5,0	1,5	7,5	125	130	180
" 6	5,0	1,8	9,0	125	130	185
" 7	3,5	2,2	7,7	120	120	185
" 8	4,0	2,0	8,8	130	140	190
" 9	6,0	1,5	9,0	130	135	190
" 10	7,0	1,5	10,5	135	140	200
Exemples de comparaison 3-1	5,0	-	5,0	125	-	170
" 2	6,3	-	6,3	135	-	175
" 3	7,0	-	7,0	140	-	180
" 4	9,0	-	9,0	145	-	190

2484904

./.

./.

TABLEAU II (*suite*)

	Module de Young		Indice de réfraction			
	Orientation longitudinale	Orientation latérale	Nx	Ny	Nz	$\bar{N}$
Exemples 3-1	27 500	47 200	1,5082	1,5161	1,4980	1,5074
" 2	27 100	47 000	1,5076	1,5170	1,4977	1,5074
" 3	25 300	47 000	1,5072	1,5168	1,4972	1,5071
" 4	29 000	47 500	1,5079	1,5170	1,4975	1,5075
" 5	30 000	46 800	1,5085	1,5166	1,4976	1,5076
" 6	31 500	47 000	1,5098	1,5150	1,4978	1,5075
" 7	26 400	46 500	1,5981	1,5172	1,4975	1,5076
" 8	30 000	45 800	1,5085	1,5165	1,4973	1,5074
" 9	32 000	45 500	1,5098	1,5155	1,4977	1,5077
" 10	33 000	45 000	1,5112	1,5137	1,4980	1,5076
Exemples de comparaison 3-1	22 000	47 000	1,5035	1,5170	1,4968	1,5058
" 2	24 000	45 000	1,5046	1,5165	1,4972	1,5061
" 3	25 000	44 000	1,5055	1,5143	1,4970	1,5056
" 4	28 000	40 000	1,5081	1,5127	1,4973	1,5060

2484904

← Exemples de Comparaison 2-1 à 2-4 ←

Dans chacun de ces exemples, on étire un film de polypropylène 5 fois dans la direction longitudinale à la température de 120°C. Ensuite, l'importance de l'étirage latéral du film est modifiée dans les exemples respectifs. Les propriétés du film de polypropylène ainsi orienté biaxialement sont consignées dans le Tableau III, ci-après. →

← Exemples de Comparaison 4-A à 4-F ←

Dans le Tableau III, ces exemples montrent les résultats des mesures déterminées sur un film de polypropylène biaxialement orienté produit par les producteurs respectifs. On fournit deux données de mesures correspondant à un film de 50µ et un film de 20µ.

EXEMPLES 4-1 à 4-7

Dans chacun de ces exemples, on étire un film de polypropylène dans la direction longitudinale au cours d'un procédé à deux étages. Ensuite, la température du film et l'importance de l'étirage latéral sont modifiées de la façon indiquée dans le Tableau IV, ci-après.
Les propriétés du film de polypropylène biaxialement orienté sont consignées dans ce Tableau IV. →

← Exemple de Comparaison 5 ←

Une résine de polypropylène ("MITSUBISHI NOBLEN FY6", fabriquée par "Mitsubishi Petrochemical Co., Ltd), ayant un indice isotactique de 97,6% et une vitesse d'écoulement à l'état fondu de 2,1g par 10 minutes, est chauffée et fondue à une température de 245°C dans un extrudeur, puis extrudée sur un cylindre de métal refroidi par de l'eau à partir d'une filière de type T. Ainsi, on obtient une feuille de 1 mm d'épaisseur. La feuille est préchauffée à une température de 130°C et étirée 7,6 fois dans la direction longitudinale. Après cela, elle est à nouveau préchauffée et tirée 10 fois dans la direction latérale au moyen d'un étireur latéral, puis enroulée après thermodurcissement. Les résultats de mesures du module d'Young et d'indice de réfraction du film de polypropylène ainsi biaxialement orienté sont consignés dans le Tableau V, également ci-après. →

TABLEAU III

	Facteur de grandissement de l'étirage longitudinal	Facteur de grandissement de l'étirage latéral	Module de Young (kg/cm³)	
			Orientation longitudinale	Orientation latérale
Exemples de comparaison 2-1	5,0	11,0	21 600	50 500
" 2	5,0	12,2	21 200	53 600
" 3	5,0	13,5	21 300	57 500
" 4	5,0	14,5	20 500	61 200
Exemples de comparaison 4 — Compagnie A (50µ)	inconnu	inconnu	23 800	50 000
" — " (20µ)	"	"	22 000	49 300
" — Compagnie B (50µ)	"	"	22 600	48 000
" — " (20µ)	"	"	22 000	50 900
" — Compagnie C (50µ)	"	"	21 100	45 300
" — " (20µ)	"	"	22 600	43 400
" — Compagnie D (50µ)	"	"	23 200	49 000
" — " (20µ)	"	"	22 000	46 500
" — Compagnie E (50µ)	"	"	20 500	40 000
" — " (20µ)	"	"	23 000	46 700

./.

2484904

./.

TABLEAU III (*suite*)

	Indice de Réfraction			
	Nx	Ny	Nz	$\bar{N}$
Exemples de comparaison 2-1	1,5025	1,5186	1,5007	1,5073
" 2	1,5017	1,5217	1,5008	1,5081
" 3	1,5018	1,5225	1,5006	1,5083
" 4	1,5012	1,5238	1,5006	1,5085
Exemples de comparaison 4 — Compagnie A (50µ)	1,5027	1,5196	1,4973	1,5065
" — " (20µ)	1,5026	1,5178	1,4968	1,5057
" — Compagnie B (50µ)	1,5042	1,5180	1,4969	1,5061
" — " (20µ)	1,5027	1,5183	1,4970	1,5060
" — Compagnie C (50µ)	1,5043	1,5176	1,4967	1,5062
" — " (20µ)	1,5047	1,5162	1,4969	1,5059
" — Compagnie D (50µ)	1,5047	1,5177	1,4970	1,5065
" — " (20µ)	1,5051	1,5167	1,4968	1,5060
" — Compagnie E (50µ)	1,5022	1,5162	1,4960	1,5043
" — " (20µ)	1,5044	1,5153	1,4961	1,5053

2484904

TABLEAU IV

	Facteur de grandissement de l'étirage longitudinal			Température (°C) dans l'étirage longitudinal		Préchauffage dans l'étirage latéral	
	Ière étape	2ème étape	Total	Ière étape	2ème étape	Temp. (°C)	Grandissement
Exemple 4-1	5,0	1,2	6,0	125	130	170	10
" 2	5,0	1,4	7,0	125	130	180	11
" 3	5,5	1,8	9,9	130	135	190	12
" 4	4,3	1,4	6,0	125	130	170	12
" 5	4,3	1,8	7,7	130	135	190	13
" 6	5,0	2,4	12,0	135	140	200	15
" 7	5,0	1,4	7,0	125	130	185	15

./.

2484904

TABLEAU IV (*suite*)

./.

	Module de Young (kg/cm^3)		Indice de Réfraction			
	Orientation longitudinale	Orientation latérale	Nx	Ny	Nz	$\bar{N}$
Exemples 4-1	26 500	47 000	1,5073	1,5171	1,4978	1,5074
" 2	28 000	48 500	1,5093	1,5167	1,4982	1,5081
" 3	36 200	55 700	1,5133	1,5178	1,5010	1,5107
" 4	25 500	51 200	1,5080	1,5191	1,4984	1,5085
" 5	28 500	53 000	1,5087	1,5195	1,4990	1,5091
" 6	39 700	56 100	1,5092	1,5200	1,5011	1,5101
" 7	23 500	63 300	1,5045	1,5236	1,4990	1,5090

2484904

EXEMPLE 6

La feuille de polypropylène de 1,8 mm d'épaisseur qui est utilisée dans l'Exemple de Comparaison 5 est chauffée à une température de 130°C et étirée dans la direction longitudinale. Ensuite, elle est préchauffée à une température de 135°C et étirée 1,7 fois. On a donc effectué un étirage longitudinal total de 7,6 fois au cours d'un procédé à deux étages. Ensuite, le film est à nouveau préchauffé, étiré 12 fois dans la direction latérale après thermodurcissement. Les propriétés du film de polypropylène ainsi biaxialement orienté sont consignées dans le Tableau V, ci-après.

EXEMPLE 6

Une résine de polypropylène "MITSUBISHI NOBLEN FY6A", fabriquée par "Mitsubishi Petrochemical Co., Ltd.", ayant un indice isotactique de 99,1% et une vitesse d'écoulement à l'état fondu de 2,0g par 10 minutes est utilisée. Par ailleurs, le procédé est tel qu'indiqué dans l'Exemple 5. Les propriétés du film de polypropylène ainsi biaxialement orienté sont consignées également dans le Tableau V.

EXEMPLE 7

Un film de polypropylène est chauffé et fondu à une température de 135°C, puis étiré 5,5 fois au cours du premier étage d'un étirage longitudinal. Ensuite, il est à nouveau chauffé et fondu à une température de 145°C et étiré 1,5 fois dans un deuxième étage d'étirage longitudinal. Par ailleurs, le procédé est tel qu'indiqué dans l'Exemple 6. Les propriétés du film de polypropylène ainsi biaxialement orienté sont consignées également dans le Tableau V.

La température de préchauffage et la température de thermodurcissement mises en oeuvre lors de l'étirage latéral du film dans chacun des Exemples et Exemples de Comparaison ci-dessus correspondent à une température limite supérieure pour laquelle l'étirage latéral peut être stabilisé et une bonne transparence du film maintenue.

TABLEAU V

		Exemple 5 de comparaison	Exemple 5	Exemple 6	Exemple 7
Indice isotactique (%).		97,6	97,6	99,1	99,1
Facteur de grandissement de l'étirage longitudinal.	1ère étape	7,6	4,5	4,5	5,5
	2ème étape	-	1,7	1,7	1,5
	Total	7,6	7,6	7,6	8,3
Température dans l'étirage longitudinal (°C).	1ère étape	130	130	130	135
	2ème étape	-	135	135	135
Facteur de grandissement de l'étirage latéral (%).		10	12	12	12
Température dans l'étirage latéral		165	170	175	177
Module de Young (kg/cm^3).	Orientation longitudinale	25 000	26 000	28 000	29 000
	Orientation latérale	45 000	51 000	53 000	52 000
Indice de réfraction.	Nx	1,5044	1,5096	1,5098	1,5102
	Ny	1,5158	1,5177	1,5190	1,5201
	Nz	1,4971	1,4980	1,4984	1,4999
Taux de retrait à chaud [orientation longitudinale /orientation latérale (%)].	120°C	3,0/2,5	2,1/1,5	0/0	0/0
	130°C	5,1/5,3	3,0/3,0	0,5/0,5	0,1/0
	140°C	7,0/8,1	4,5/5,3	1,0/1,0	0,4/0,5
	150°C	10,2/17,2	7,0/9,1	1,8/2,2	1,0/1,0

2484904

Ainsi qu'il est décrit ci-dessus, un procédé de production d'un polypropylène biaxialement orienté selon la présente invention est caractérisé en ce que l'étirage longitudinal d'un film de polypropylène précédant l'étirage latéral de celui-ci est effectué au cours d'un procédé comprenant au moins deux étages. De préférence, lors du premier étage d'étirage longitudinal, le film de polypropylène est étiré d'au moins 50 à 90% par rapport à l'étirage longitudinal total de celui-ci. L'étirage longitudinal est effectué de préférence en 2 ou 3 étapes. La température du film dans chacune de ces étapes de l'étirage longitudinal est équivalente ou supérieure à celle qui règne dans l'étage précédent d'étirage longitudinal.

Ainsi, il n'est pas nécessaire du tout d'ajouter d'équipement existant à un quelconque dispositif spécial plus important. Le coût nécessaire à la réalisation de cette méthode est très faible et aucun espace supplémentaire n'est requis.

De plus, un film de polypropylène biaxialement orienté obtenu selon le procédé de l'invention a une propriété équilibrée dans ses directions longitudinale et latérale, c'est-à-dire une excellente rigidité puisque l'indice de réfraction Nx obtenu dans la direction longitudinale et l'indice de réfraction Ny obtenu dans la direction latérale ont respectivement une valeur élevée, si bien que la somme de ces indices présente une valeur élevée.

Bien entendu, la présente invention n'est nullement limitée aux exemples et modes de mise en oeuvre mentionnés ci-dessus; elle est susceptible de nombreuses variantes accessibles à l'homme de l'art, suivant les applications envisagées et sans que l'on ne s'écarte de l'esprit de l'invention.

REVENDICATIONS

1.- Méthode pour produire un film de polypropylène biaxialement orienté comprenant une étape de fusion et d'extrusion du polypropylène en forme de feuille, une étape de refroidissement et de solidification du film de polypropylène formé, une étape de préchauffage et une étape d'étirage de celui-ci dans la direction longitudinale et enfin dans la direction latérale, caractérisée en ce que l'étirage longitudinal du film de polypropylène est effectué au cours d'un procédé comprenant au moins deux étages.

2.- Méthode pour produire un film de polypropylène biaxialement orienté selon la revendication 1, caractérisée en ce que l'étirage longitudinal du film de polypropylène est effectué en 2 à 5 étapes et, de préférence, en 2 ou 3 étapes.

3.- Méthode pour produire un film de polypropylène biaxialement orienté selon la revendication 2, caractérisée en ce qu'au cours du premier étage de l'étirage longitudinal, le film de polypropylène est étiré d'au moins 50 à 90% de l'étirage longitudinal global de celui-ci.

4.- Méthode pour produire un film de polypropylène biaxialement orienté selon la revendication 3, caractérisée en ce que la température du film de polypropylène dans chacune des étapes d'étirage longitudinal est équivalente ou supérieure à celle du film de polypropylène dans l'étape précédente d'étirage longitudinal.

5.- Méthode pour produire un film de polypropylène biaxialement orienté selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisée en ce que l'indice isotactique du polypropylène n'est pas inférieur à 98%.

6.- Méthode pour produire un film de polypropylène biaxialement orienté selon la revendication 1, 2 ou 4, caractérisée en ce que la température du film de polypropylène dans l'étage final d'étirage longitudinal est comprise entre 130 et 160°C.

7.- Film de polypropylène biaxialement orienté, caractérisé en ce que l'indice de réfraction Nx de ce film, mesuré à la température de 20°C dans la direction longitudinale, n'est pas inférieur à 1,5040, tandis que l'indice de réfraction Ny du film de polypropylène mesuré à la même température dans la direction latérale n'est pas inférieur à 1,5120, si bien que la somme de ces indices n'est pas inférieure à 3,023.