

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

(21)

N° 79 08638

(54)

Procédé de fabrication d'un produit stratifié.

(51)

Classification internationale (Int. Cl. ³). B 29 D 7/24, 9/00.

(22)

Date de dépôt..... 5 avril 1979, à 15 h 38 mn.

(33) (32) (31)

Priorité revendiquée : *Grande-Bretagne, brevets d'invention, 5 juillet 1974, n° 29807/74; 11 décembre 1974, n° 53644/74; 12 février 1975, n° 05971/75 et 05972/75, au nom du demandeur.*

(41)

Date de la mise à la disposition du
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 31 du 31-7-1981.

(71)

Déposant : OLE-BENDT RASMUSSEN, résidant au Danemark.

(72)

Invention de :

(73)

Titulaire : *Idem* (71)

(74)

Mandataire : Cabinet Z. Weinstein,
20, av. de Friedland, 75008 Paris.

3° demande divisionnaire bénéficiant de la date de dépôt du 7 juillet 1975 de la demande de brevet initiale n° 75 21260 (art. 14 de la loi du 2 janvier 1968).

La présente invention concerne un procédé de fabrication d'un stratifié.

On rappelle que l'on connaît différentes méthodes pour relier des films de manière à former un stratifié. Par exemple il est habituel dans le cas où les films sont formés par extrusion d'extruder aussi sur une ou chacune des surfaces des films se faisant face un polymère adhésif de telle manière qu'une simple pression entre les films, souvent combinée avec un chauffage, entraîne la liaison entre les films.

Selon l'invention, les films, d'une manière préférée, sont obtenus par un procédé comprenant les opérations consistant en l'atténuation ou l'extension à l'état fondu pendant l'extrusion de chacune d'au moins deux couches d'un mélange de polymère fondu pour impartir au polymère un grain ou une direction de fibres unidirectionnel avec une direction marquée d'aptitude à se fendre quand il est solidifié; à réunir avant ou après solidification desdites couches, les couches en une feuille commune, les directions de grain ou de fibres de couches adjacentes s'étendant ici suivant une configuration entrecroisée tout en formant une liaison adhérente généralement faible entre lesdites couches; à solidifier si elle n'est pas déjà solide, et à orienter enfin biaxialement la feuille stratifiée solide ainsi obtenue en plusieurs opérations ou étapes qui sont chacune généralement sensiblement uniaxiale à une température suffisamment basse pour maintenir une aptitude importante à se fendre dans chaque couche.

Le produit, ainsi fabriqué, est un stratifié à haute résistance mécanique comprenant des films biaxialement orientés et liés de façon adhérente généralement faiblement, dont chacun est formé d'un mélange qui présente une morphologie fibreuse distincte, les fibres formant un grain unidirectionnel distinct quand il est mesuré à une échelle macroscopique mais en ayant les portions de fibres fortement déviées ou défléchies de cette direction comme cela est vu à une échelle microscopique et en ayant les grains unidirectionnels res-

pectifs, dans au moins deux des films, s'entre-croisant mutuellement l'un avec l'autre.

Il s'est avéré que la structure ainsi formée est particulièrement appropriée pour presque toutes les applications de haute résistance mécanique où une absorption d'énergie est essentielle, indépendamment du fait que cette absorption d'énergie ait lieu pendant une propagation de déchirure, une perforation ou un transperçement ou un choc. L'aptitude à se fendre des couches en corrélation avec la faible liaison adhérente entre les couches produit un "effet de fourchage ou de ramification" semblable à celui se produisant dans des stratifiés à plis croisés d'un film orienté uniaxialement mais l'absorption d'énergie, pendant un déchirement rapide (essai de déchirement d'Elmendorf) est essentiellement plus grande. En outre, la plupart des propriétés de résistance au choc ou de résilience et en particulier la résistance au choc ou résilience d'Elmendorf sont améliorées ainsi qu'habituellement l'absorption d'énergie pendant une perforation rapide (résistance de Beach). Ces perfectionnements sont considérés comme résultant partiellement de la nature biaxiale de l'orientation dans chaque couche et partiellement de la morphologie fibreuse distincte. L'orientation biaxiale présente en outre l'avantage que le stratifié conforme à l'invention, possède des propriétés de film ou de pellicule rétrécissables que des stratifiés à plis croisés de films orientés uniaxialement ne possèdent pas.

Un procédé antérieur décrit dans le brevet britannique 1261397 pour produire la stratification à plis ou couches croisés de films orientés uniaxialement, donne, dans des conditions pratiques, une limite assez élevée pour l'épaisseur de feuille (environ 90 g/m^2 pour un stratifié à trois plis ou couches) et une limite assez basse pour la largeur de feuille. A ces deux égards, le présent procédé est très avantageux en raison du fait que la feuille est fortement tendue ou étirée dans deux ou dans un plus grand nombre de directions après l'opération de stratification. Ainsi, il est techniquement et économiquement possible d'obtenir un poids ou une masse superficiel

de 10 g/m² pour les films dans le stratifié, c'est-à-dire environ 30 g/m² pour un stratifié à trois plis ou couche. Ceci élargit grandement le domaine d'emploi.

5 Alors que des mélanges de polymères très compatibles, par exemple de différentes polyamides, ne formeront habituellement pas un grain tel que décrit, des mélanges de polymères thermoplastiques co-extrudables semi-compatibles ou incompatibles le donneront toujours, pourvu que la teneur
10 en un polymère ne soit pas trop prédominante. Pour être dans la marge de sécurité, il ne devra pas y avoir plus de 85% d'un polymère quelconque dans le mélange. Si les polymères sont réellement incompatibles, on ajoutera de préférence un "agent alliant".

15 Les meilleures propriétés seront obtenues si le grain est formé de fils cristallins "collés" ou liés ensemble par de faibles quantités d'élastomère environnant. Par petites quantités, on entend des quantités de 5% à 20% du total.

20 Afin de maintenir la teneur en élastomère faible et toujours obtenir une morphologie fibreuse distincte avec l'élastomère tendant à entourer l'autre matière, l'élastomère est de préférence utilisé comme "agent alliant" pour les deux autres polymères. Ainsi, une composition préférable consiste en deux polyoléfinés cristallins incompatibles,
25 par exemple en polypropylène isotactique ou syndiotactique et en polyéthylène de densité élevée ou basse, avec addition d'un polymère poisseux, collant, gluant ou adhésif qui se lie adhésivement ou adhère aux deux, par exemple tel qu'un
30 polypropylène atactique, du caoutchouc d'éthylène-propylène (de préférence un type gluant ou visqueux avec une teneur relativement élevée en propylène) et du polyisobutylène d'une masse ou d'un poids moléculaire tel qu'utilisé ordinairement pour des colles sensibles à la pression.

35 En ce qui concerne l'orientation biaxiale, il s'est avéré essentiel de l'exécuter en plusieurs opérations, étapes ou phases qui sont chacune généralement sensiblement uniaxiale. On a constaté ainsi que l'extension ou l'étirement

simultané dans deux directions détruisait le grain, de sorte qu'aucun "effet de fourchage ou de bifurcation ou de ramification" n'était obtenu. Il y a aussi une tendance à la destruction du grain en étirant ou tendant quand on est près du point de fusion des éléments composants principaux de la feuille. On pense que la recristallisation et d'autres phénomènes physiques de réarrangement de phases jouent un rôle à cet égard. Dans tous les cas, les meilleures propriétés ont été constatées en étirant ou tendant en dessous de la température de recristallisation qui, par exemple pour le polypropylène, est d'environ 70°C à 80°C et même des températures plus basses sont préférables. Pour étirer ou tendre à de telles températures basses, des procédés spéciaux d'étirage ou de mise en tension sont nécessaires, qui seront traités ultérieurement dans cette description.

Afin de simplifier la stratification de films séparément extrudés et solidifiés et rendre ainsi également possible la stratification de films plus minces, au moins la première phase du procédé d'union ou d'assemblage peut être combinée avec au moins une première phase d'une opération d'extension latérale. Ceci contribue essentiellement à empêcher la formation de plis ou de plissures pendant la stratification. Si la température désirable d'extension ou de mise en tension est inférieure à la température nécessaire pour coller les films ensemble, la première partie par exemple 10% à 20%, de l'opération d'extension ou d'allongement peut avoir lieu à une température plus élevée sans aucun dommage appréciable.

Afin de faciliter la liaison d'assemblage en corrélation avec le procédé comprenant les opérations d'extrusion et d'atténuation ou d'étirage à l'état fondu des couches précitées d'une façon mutuellement indépendante avant de les réunir en une feuille commune précitée, un polymère adhésif, fondant à une température inférieure peut être co-extrudé sur au moins une surface d'au moins une des couches.

Ceci peut être exécuté en choisissant, pour le polymère adhésif co-extrudé précité, une matière suffisamment

collante, poisseuse ou visqueuse pour que des couches adjacentes soient réunies uniquement par l'opération d'étirage ou d'extension sous pression ou pendant l'application de la pression. Ceci a l'avantage pratique d'éviter des moyens de chauffage contrôlés, commandés ou réglés, de sorte que l'appareillage devient ainsi particulièrement moins cher. A ce propos, on a constaté que l'extension ou l'étirement simultané de deux films pendant qu'ils sont pressés ensemble selon un mode de réalisation qui sera décrit ci-dessous, présente une tendance élevée surprenante à souder à froid les films ensemble, de sorte que seul un faible degré de collant ou d'adhésivité est nécessaire. Par exemple, des couches superficielles ou de surface de polyéthylène avec 16% d'acétate de vinyle copolymérisé se sont avérées à fondre à la température ambiante de cette manière, en donnant une résistance au détachement de 10 g/cm. La force de liaison adhérente peut subséquemment être accrue par passage sur ou entre des rouleaux ou cylindres chauffés.

Un mode de réalisation très important du procédé conforme à l'invention consiste en ce que l'opération d'étirage ou d'extension biaxiale consiste à appliquer des forces d'étirage ou d'extension latérale réparties généralement uniformément ou régulièrement sur le plan du film.

L'étirage biaxial précité peut être exécuté en plusieurs opérations d'étirage ou d'extension latérale par impression linéaire pour fléchir ou déformer le film sur une configuration de section transversale temporairement plissée et uniformément régulièrement répartie et en une ou plusieurs opérations d'étirage ou d'extension longitudinal.

La configuration temporairement plissée précitée peut être réalisée par plusieurs opérations d'étirage ou d'extension latérale entre des rouleaux cannelés ou analogues, les plis formant des striations qui sont parallèles à la direction longitudinale du film précité ou forment un petit angle avec celle-ci et en ce que l'étirage ou l'extension longitudinal précité est effectué de façon continue de préférence sur une zone d'étirage courte.

Le polymère adhésif peut être co-extrudé en bande. Il est ainsi possible d'obtenir commodément la configuration selon la combinaison liaison adhérente forte/liaison adhérente faible ou liaison adhérente forte/sans liaison adhérente entre les couches obtenues par le procédé d'extrusion mentionné ci-dessus.

Un autre procédé pour obtenir commodément une configuration de liaison adhérente du type précité consiste à co-extruder, sur l'une des surfaces adjacentes de deux couches, un pli ou une couche continue d'un polymère adhésif et en outre à munir l'autre desdites surfaces d'une couche de séparation agencée en bande ou par point discret.

Encore un autre procédé pour obtenir le type précité de configuration de liaison adhérente consiste à co-extruder le polymère adhésif en bande sur deux surfaces adjacentes de deux couches, lesdites bandes sur une couche s'entre-croisant avec celles de l'autre couche. Grâce à cette caractéristique, les zones dépourvues de liaison adhérente forment une configuration pointillée ou à point.

Comme cela a été mentionné précédemment, l'opération d'extension ou d'étirement est exécutée de préférence à une température relativement basse, par exemple à la température ambiante et l'emploi, comme cela est normal, d'une élargisseuse ou rameuse de mise à la lèze dans ces circonstances donnera presque inévitablement un effet irrégulier ou inégal de formation de colle ou zone centrale rétrécie d'étirage avec une résistance à la propagation de la déchirure variant latéralement.

Il est connu de produire une extension ou élongation latérale sous application uniforme, régulière ou égale de forces d'extension ou d'étirage (voir brevet français n° 1 331 095 et brevet britannique n° 1 078 732). Les deux brevets préconisent l'emploi de deux courroies convoyeuses ou bandes transporteuses en caoutchouc qui sont dilatées latéralement en même temps lorsqu'elles sont fermement pressées ensemble l'une contre l'autre en saisissant et en tirant ainsi le film. Cependant, pour emploi dans la présente

invention, la méthode plus simple qui consiste à imprimer au film une configuration de section transversale temporairement plissé et à lui faire subir plusieurs opérations d'étirage longitudinal s'est avérée être plus commode. Il est à noter
5 à ce propos qu'une distribution ou répartition strictement régulière ou uniforme des forces d'extension ou d'étirage n'est pas nécessaire mais, par contre, une certaine irrégularité ou inégalité à petite échelle sera avantageuse en ce qui concerne la résistance à la propagation de la
10 déchirure. Il s'est en particulier avéré être avantageux pour la résistance à la propagation de la déchirure de laisser l'état d'orientation varier conformément à une configuration de striations (voir figures 3 et 4) de telle manière que, dans un groupe de striations, l'orientation biaxiale est
15 déséquilibrée et est le plus fortement parallèle ou presque parallèle aux striations tandis que, dans les striations intermédiaires, elle est également déséquilibrée mais est le plus fortement perpendiculaire ou presque perpendiculaire aux striations. Afin d'obtenir cette configuration, le procédé
20 d'extension ou d'étirage selon la méthode décrite plus haut peut être exécuté avantageusement par l'emploi de rouleaux cannelés dans les conditions décrites précédemment.

Quand des résistances spécialement élevées à la propagation de la déchirure et à la perforation sont désirables et lorsqu'une limite élastique relativement basse est
25 permmissible, l'extension ou l'étirage est exécuté par l'emploi de rouleaux cannelés dans les conditions décrites précédemment. On obtient ainsi un allongement relatif plus élevé à la rupture. Afin de permettre la contraction en même temps
30 que l'extension ou l'étirage longitudinal est exécuté dans une zone étroite, le stratifié est de préférence pourvu de plis ou plissures longitudinaux fins, d'une façon analogue à ce qui est révélé dans le brevet américain n° 3 233 029. A ce propos, un résultat approprié est habituellement obtenu
35 quand les plis fins, formés par la dernière opération du procédé d'extension ou d'élongation latérale par la méthode des rouleaux sont maintenus ou conservés dans la feuille

quand cette dernière est introduite dans la zone d'extension ou d'élongation longitudinale.

Bien qu'il ait été indiqué ci-dessus qu'il y a des avantages à produire une configuration striée de variations d'orientation et d'épaisseur spécialement en vue de la résistance à la propagation de la déchirure, cet effet ne doit normalement pas être exagéré puisque cela aurait un effet défavorable ou nuisible sur l'aptitude à l'impression ainsi que sur la résistance à la perforation par des articles ou objets pointus ou effilés.

L'invention sera mieux comprise et d'autres buts, caractéristiques, détails et avantages de celle-ci apparaîtront plus clairement à la lecture de la description explicative qui va suivre en faisant référence aux dessins schématiques annexés donnés uniquement à titre d'exemple non limitatifs illustrant divers modes de réalisation spécifiques actuellement préférés de l'invention et dans lesquels :

- la figure 1 représente une chaîne opératoire de travail dans un procédé d'extension ou d'étirage à froid

- la figure 2 est une vue en détail des rouleaux cannelés ou à rainures qui accomplissent l'extension ou l'élongation latérale dans des zones irrégulières ou inégales appelées "striations";

- la figure 3 est un croquis schématique, tracé à une échelle agrandie, de la configuration des striations et de l'orientation de celle-ci, d'un film étiré, tendu ou allongé de façon croisée conformément à la chaîne opératoire de travail selon la figure 1 ; et

- la figure 4 est une vue agrandie en coupe transversale du film selon la figure 3 telle que révélée en réalité par microscopie mais où, par souci de clarté, l'épaisseur est représentée à une échelle double de celle de la largeur.

En faisant référence à la figure 1, la section "Q" est la ligne où l'extension ou l'élongation transversale et la stratification sont réalisées sur la feuille 79 et la section "R" est la ligne d'extension d'étirage longitu-

dinal. La feuille 79 comporte une paire de films qui ont été réalisés séparément et amenés ensemble sans être finalement réunis en un stratifié avant le premier rouleau 72. Le système de rouleaux dans la section "Q" se compose de rouleaux pinceurs menés ou entraînés 71, de rouleaux ou cylindres cannelés menés 72, de rouleaux fous de guidage ou de renvoi 73 et de rouleaux banane 74. Les rouleaux banane 74 servent, après chaque opération, à éliminer, par étirage, les plis produits par l'extension ou l'élongation latérale. En passant sur le rouleau fou de renvoi 75, le film 79 pénètre dans la section "R" qui constitue la ligne d'étirage ou d'extension longitudinale où il est tiré à travers un bain d'eau 76 servant à éliminer la chaleur d'extension ou d'élongation et à maintenir une température d'extension appropriée, par exemple à une valeur de 20°C à 40°C pour parvenir sur une bobine 77.

La flèche 78 indique la direction de défilement dans la machine.

Sur la figure 2, une paire de rouleaux cannelés 72 est représentée en détail avec le film 79 pressé et étiré ou allongé entre les dents 80 des rouleaux ou cylindres 72.

Sur la figure 3, les longueurs relatives des flèches dans les striations I et II du film 79 indiquent les quantités relatives d'orientation réalisées par la méthode d'extension biaxiale illustrée par les figures 1 et 2.

Sur la figure 3 ainsi que sur la figure 4, les chiffres de référence I et II indiquent les striations qui ont généralement une largeur variable et une nature irrégulière ou inégale. Il est à noter en outre que les couches extérieures 81 et 82 du film 79 ne sont pas toujours symétriques par rapport à la couche médiane ou intermédiaire mince 83. Cette symétrie sert en outre à réaliser une "fourche ou bifurcation" de déchirure.

Exemple 1.

Un film tubulaire à trois couches est extrudé avec la composition suivante :

Couche médiane, centrale ou intermédiaire (70% du total ou de l'ensemble) :

85% de polypropylène isotactique du type à phase gazeuse ("Novolène") à haute teneur en substances atactiques ;

5 15% de copolymère d'éthylène et d'acétate de vinyle (16% d'acétate de vinyle).

Les deux couches de surface (l'une représentant 10% du total et l'autre 20% du total) ;

10 Copolymère d'éthylène et d'acétate de vinyle (16% d'acétate de vinyle) pour servir de couches adhésives.

Le propylène possède un indice de fusion de 0,3 à 0,6 conformément à la condition L spécifiée dans la norme américaine ASTM D 12 38 (de l'association américaine pour l'essai des matériaux) tandis que le copolymère d'éthylène et d'acétate de vinyle a un indice de fusion de 2,5 conformément à la même norme américaine ASTM mais sous la condition E. Le film tubulaire est extrudé à partir d'une fente de 1 mm de large à une température de 180°C à 230°C et étiré jusqu'à 0,130 mm à l'état fondu. Le rapport de gonflement ou de soufflage est maintenu à une valeur très faible, à savoir 1,2 : 1. Il est ensuite découpé hélicoïdalement en un film plat suivant un angle de "grain" ou de direction des fibres de 45°. Deux tels films découpés hélicoïdalement avec leurs "grains" perpendiculaires l'un à l'autre et les couches de surface plus minces se faisant face mutuellement, sont amenés ensemble à 20°C à travers 7 groupes de "rouleaux ou cylindres cannelés" (voir figures 1 et 7). La largeur de chaque rainure ou cannelure est de 1 mm et la largeur de chaque arête ou nervure est de 0,5 mm. L'engrènement mutuel des arêtes ou nervures les unes avec les autres (différence de niveau entre les sommets) est de 2 mm. Entre chaque passage à travers un groupe de "rouleaux cannelés", les plis, formés dans le stratifié, sont éliminés par étirement.

35 En raison du travail mécanique entre les "rouleaux cannelés" et en raison des couches de polymères qui agissent comme moyens adhésifs ou collants, les deux films sont ainsi soudés à froid ensemble avec une force de liaison adhérente

relativement basse (résistance au détachement mesurée comme étant égale à 10 g/cm) et sont en même temps étirés transversalement. A près les sept passages à 20°C, on fait passer le film une fois à travers un groupe semblable de "rouleaux cannelés" ayant les mêmes dimensions et engrenant mutuellement mais chauffés à 120°C, de sorte qu'il se forme des lignes de forte liaison adhérente.

5
10
15
Finalement, le stratifié est orienté longitudinalement en trois opérations, phases ou étapes avec un intervalle d'étirage d'environ 1 cm entre moyens de retenues et moyens de traction (de façon à rendre la contraction transversale minimale). La dernière extension ou élongation est réglée de façon que le rapport d'extension ou d'allongement à froid latéral total et le rapport d'extension à froid longitudinal total soient égaux, de sorte que le produit de ceux-ci, c'est-à-dire le rapport à l'aire de surface à l'étirage ou à l'allongement d'extension est égal à 2,4 : 1.

20
25
30
Les résultats d'essai étaient comparables à ceux d'un film de polyéthylène à basse densité de la qualité convenant à des sacs pour service dur ou travail de fatigue ayant une masse superficielle supérieure de 85% et un indice de fusion de 0,3 conformément à la même condition E de la norme ou spécification technique américaine ASTM. L'épaisseur correspondait à une masse superficielle de 100 g/m² pour le stratifié et à 185 g/m² pour le film de polyéthylène. La résilience ou résistance au choc, mesurée par la chute d'une bille tombante (d'un diamètre de 61 mm et d'un poids de 320 g) pour le film stratifié de 100 g/m² était égale à 5,5 mm tandis que pour le film de polyéthylène de 180 g/m², elle était de 2,0 m.

Résistance à la déchirure sur éprouvette à languettes :
Déchirement à une vitesse de 100 mm/min, largeur totale d'échantillon : 5 cm; longueur d'entaille ou d'incision : 10 cm :

35
Pour le film stratifié de 100 g/m² : 5,9 kg dans la direction de défilement dans la machine et 6,8 kg dans la direction transversale.

Pour le film de polyéthylène de 180 g/m^2 : 1,3 kg.

Résistance à la déchirure par essai d'Elmendorf
(déchirement par choc) :

L'essai est une modification ou variante de normes
visant à une déchirure plus symétrique. Résultats :

Pour le film stratifié de 100 g/m^2 : 441 kg-cm/cm^2
en direction longitudinale et 344 kg-cm/cm^2 en direction
transversale.

Pour le film de polypropylène de 180 g/m^2 : 167 kg-cm/cm^2
en direction longitudinale et 172 kg-cm/cm^2 en direction
transversale.

Un morceau de feuille est délaminé ou décollé en
pelant ou détachant les couches pour les séparer et la
structure est examinée au microscope. Les couches principales
ont une morphologie fibreuse prononcée avec des directions
de grain ou de fibres en zigzag.

Exemple 2.

Le mode opératoire de l'exemple 1 est répété avec
les modifications suivantes :

Le film co-extrudé à trois couches avait la composition
suivante :

Couche médiane, intermédiaire ou centrale (70% du
total) :

85% de polypropylène isotactique (du même type que
dans l'exemple 1),

15% de caoutchouc à base d'éthylène-propylène (avec
approximativement le même indice de fusion que le propylène).

Les deux couches de surface ou superficielles (cha-
cune représentant 15% du total) :

Copolymère d'éthylène et d'acétate de vinyle (du
même type que dans l'exemple 1).

Le film était plus fortement atténué ou étiré à
l'état fondu après la sortie de la filière, c'est-à-dire en
l'étirant de 1 mm d'épaisseur jusqu'à 0,065 mm d'épaisseur
(correspondant à 60 g/m^2).

Des examens en lumière polarisée montrèrent que

l'orientation à l'état fondu, ainsi produite, correspondait à un allongement ou étirage uniaxial à froid d'environ 35%.

5 Après le découpage en spirale, on obtenait un stratifié à trois plis ou couches. La troisième couche, qui était placée au milieu, avait une "direction de grain" longitudinale obtenue par découpage longitudinal du même film.

10 La stratification et l'étirage eurent lieu sur le système de machine de l'exemple 1 mais toutes les opérations furent exécutées à 20°C et l'appareil fut réglé de façon à produire ainsi un rapport d'aire de surface totale à l'étirage ou à l'extension de 2,5 : 1 par lequel l'épaisseur du stratifié final devenait égale
15 à une valeur correspondant à une masse superficielle de 72 g/m².

La résistance au détachement de la liaison adhérente entre les couches fut mesurée comme étant égale à 10 g/cm. Des examens au microscope montrèrent une structure
20 semblable à celle obtenue dans l'exemple 1. Les résultats d'essai suivants furent obtenus :

| 25 | | | Présent film à 3 couches | Comparaison avec film de polyéthylène de basse densité |
|----|---|--------------------|-----------------------------|---|
| | | | 72 g/m ² | 184 g/m ² |
| 30 | Résilience | | 1000 gm | 530 gm |
| | Résistance à la propagation de la déchirure | DM ⁺) | 848 gm | 307 gm |
| | (déchirement lent) | DT ⁺⁺) | 1120 gm | 620 gm |
| | Charge de rupture | DM | 11,1 kg | 10,6 kg |
| | (échantillon de 25,4mm de large) | DT | 8,3 kg | 10,7 kg |
| 35 | Allongement de rupture | DM | 286 % | 467 % |
| | Retrait | DT | 347 % | 620 % |
| | 1 mn à 130°C | DM | 28 % | - |
| | | DT | 14 % | - |
| | 1 mn à 155°C | DM | 58 % | - |
| | | DT | 41 % | - |

+) Direction de défilement dans machine.

++) Direction transversale.

5 On comprendra que les nouveaux procédés et appareils d'extrusion décrits ci-dessus auront aussi certaines applications utiles en dehors du domaine des films avec grains et formés d'un mélange de polymères. Ainsi, ils peuvent être employés pour extruder et stratifier des films sans "grain".

10 Bien entendu, l'invention n'est nullement limitée aux modes de réalisation décrits et représentés qui n'ont été donnés qu'à titre d'exemple. En particulier, elle comprend tous les moyens constituant des équivalents techniques des moyens décrits ainsi que leurs combinaisons, si celles-ci sont exécutées suivant son esprit et mises en oeuvre dans le cadre des revendications qui suivent.

[illegible]

5

10

15

20

25

30

7. - Procédé selon la revendication 6, caractérisé en ce que les plis formés par passage à travers une paire de

rouleaux sont aplatis avant le passage à travers la paire suivante de rouleaux.

5 8. - Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 à 7, caractérisé en ce qu'au moins un des rouleaux est chauffé en vue d'améliorer la liaison ou soudure entre les films

9. - Procédé selon l'une quelconque des revendications 3 à 7, caractérisé en ce que l'étirement sous pression est réalisé substantiellement à température ambiante.

10 10. - Procédé selon l'une quelconque des revendications 3 à 9, caractérisé en ce que le produit stratifié est ensuite étiré longitudinalement en une ou plusieurs étapes séparées.

11. - Procédé selon la revendication 10, caractérisé en ce qu'on permet une contraction latérale importante du produit précité pendant l'étirage longitudinal précité.

15 12. - Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'au moins une des surfaces se faisant face des films qui doivent être reliés comprend une couche d'un polymère ayant un point de fusion inférieur au reste du film.

20 13. - Procédé selon la revendication 11, caractérisé en ce que la couche de polymère à bas point de fusion est sous forme de bandes ou de points.

25 14. - Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que chaque film est formé par extrusion d'un mélange de polymères qui sont incompatibles de sorte que lors de la solidification le mélange comprend une dispersion d'un polymère dans une matrice en polymère.

15. - Produit stratifié caractérisé en ce qu'il est obtenu par le procédé selon l'une des revendications 1 à 14.

30 16. - Appareil pour l'exécution du procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il comprend des moyens pour faire avancer deux ou plusieurs films vers un système d'étirement latéral, et des moyens pour superposer les films dans le système, en ce que le système d'étirement transversal comprend des moyens pour appliquer une pression le long de
35 lignes s'étendant substantiellement dans la direction longitudinale des films et pour simultanément étirer les films

dans une direction latérale, de manière à former un stratifié ayant une configuration temporaire de plis substantiellement longitudinaux et distribués sensiblement régulièrement.

5 17. - Appareil selon la revendication 16, caractérisé en ce que les moyens pour appliquer une pression et pour étirer les films comprennent une paire de rouleaux cannelés à engrènement mutuel et des moyens pour faire passer les films à travers l'écartement entre ces rouleaux, les cannelures s'étendant substantiellement dans la direction lon-
10 gitudinale des films.

18. - Appareil selon la revendication 17, caractérisé en ce qu'il comporte plusieurs paires de rouleaux cannelés à engrènement mutuel et des moyens pour faire passer les films à travers l'écartement de chacune des paires de rou-
15 leaux en série.

19. - Appareil selon les revendications 17 ou 18, caractérisé en ce qu'il comporte des moyens de chauffage d'au moins un des rouleaux cannelés.

20. - Appareil selon l'une quelconque des revendications 16 à 19, caractérisé en ce qu'il comporte des moyens pour
20 étirer longitudinalement le produit stratifié.

FIG.1-

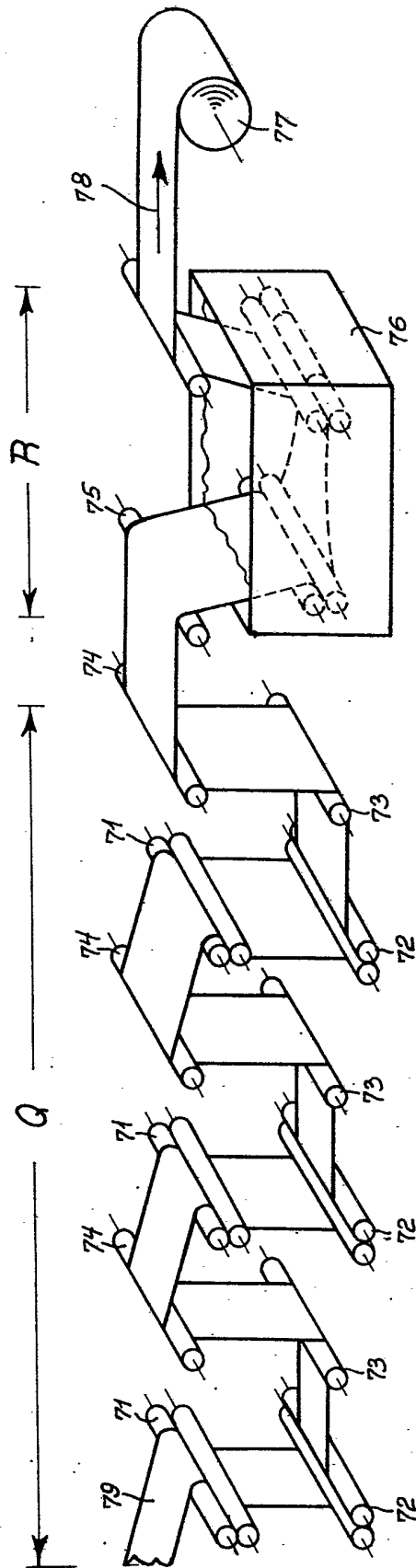


FIG. 2.

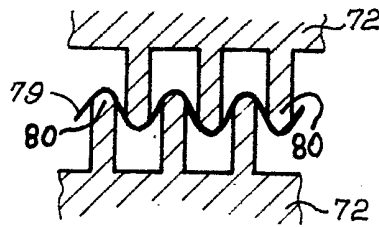


FIG. 3.

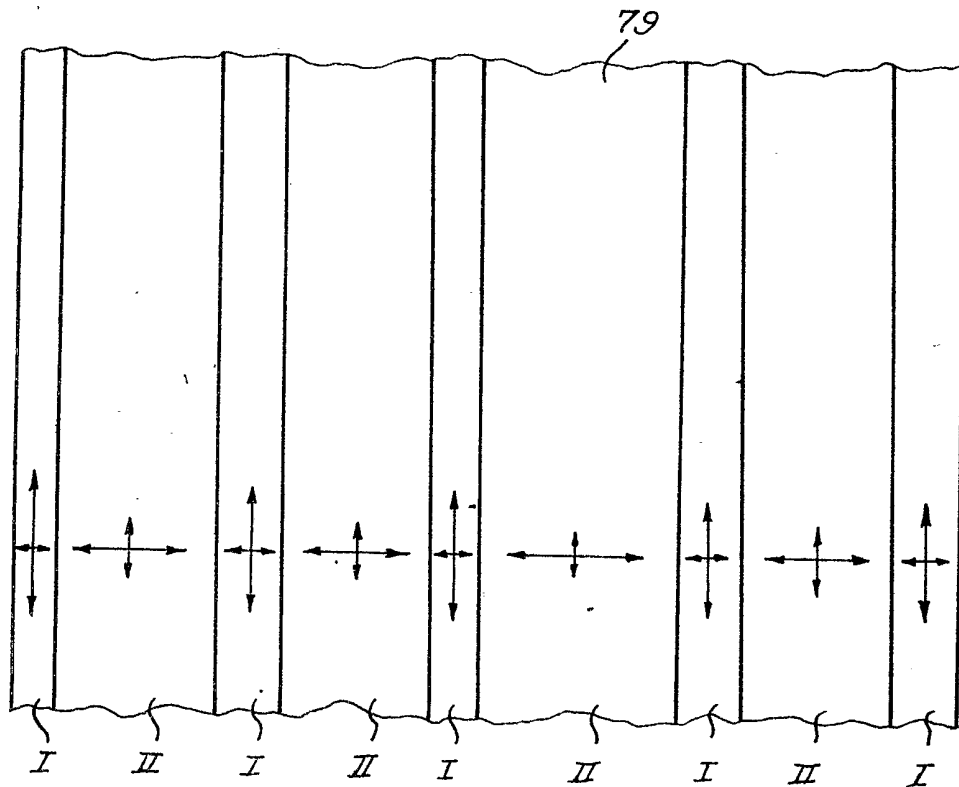


FIG. 4.

