



## DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITE DE COOPERATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

<b>(51) Classification internationale des brevets <sup>6</sup> :</b>  <b>C08K 7/10, 3/34</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Numéro de publication internationale:</b> <b>WO 99/31174</b>  <b>(43) Date de publication internationale:</b> 24 juin 1999 (24.06.99)
<b>(21) Numéro de la demande internationale:</b> PCT/FR98/02637  <b>(22) Date de dépôt international:</b> 7 décembre 1998 (07.12.98)  <b>(30) Données relatives à la priorité:</b> 97/15956                      16 décembre 1997 (16.12.97)      FR  <b>(71) Déposant (pour tous les Etats désignés sauf US):</b> TALC DE LUZENAC [FR/FR]; F-09250 Luzenac (FR).  <b>(72) Inventeurs; et</b> <b>(75) Inventeurs/Déposants (US seulement):</b> JOUFFRET, Frédéric [FR/FR]; 36, avenue Aristide Briand, F-31400 Toulouse (FR). FOURTY, Georges [FR/FR]; 41, rue des Martyrs de la Libération, F-31400 Toulouse (FR).  <b>(74) Mandataire:</b> CABINET BARRE LAFORGUE & ASSOCIES; 95, rue des Amidonniers, F-31000 Toulouse (FR).		<b>(81) Etats désignés:</b> AU, BR, CA, CN, HU, JP, US, brevet européen (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>Publiée</b> <i>Avec rapport de recherche internationale.</i>
<b>(54) Title:</b> METHOD FOR PREPARING A THERMOPLASTIC COMPOSITION BASED ON POLYOLEFINS, RESULTING COMPOSITION AND APPLICATION FOR MAKING THREE-DIMENSIONAL OBJECTS		
<b>(54) Titre:</b> PROCEDE DE PREPARATION D'UNE COMPOSITION THERMOPLASTIQUE A BASE DE POLYOLEFINES, COMPOSITION OBTENUE ET APPLICATION A LA FABRICATION D'OBJETS A TROIS DIMENSIONS		
<b>(57) Abstract</b>		
<p>The invention concerns a method for preparing a thermoplastic composition based on polyolefins for making three-dimensional objects, in particular thin-walled wrapping and packaging cases, which consists in incorporating into the polyolefins talc in a percentage substantially between 5 and 25 %, said talc being in the form of a powder with lamellarity index not less than 1.4 and particle size distribution such that the cut diameter D<sub>95</sub> is not more than 18 microns and the median diameter D<sub>50</sub> is not more than 6 microns, Said incorporation brings about a significant increase of the ratio Re/P in thermoformed three-dimensional objects, Re being the crush resistance between two surfaces of an object and P its weight.</p>		
<b>(57) Abrégé</b>		
<p>L'invention concerne un procédé de préparation d'une composition thermoplastique à base de polyoléfines pour la fabrication d'objets à trois dimensions, en particulier conditionnements ou emballages à parois de faible épaisseur. On incorpore aux polyoléfines du talc en pourcentage sensiblement compris entre 5 et 25 %; ce talc se présente sous la forme d'une poudre d'indice de lamellarité supérieur ou égal à 1,4 et de répartition granulométrique telle que le diamètre de coupure D<sub>95</sub> soit inférieur ou égal à 18 microns et que le diamètre médian D<sub>50</sub> soit inférieur ou égal à 6 microns. Cette incorporation entraîne une augmentation significative du rapport Re/P des objets à trois dimensions réalisés par thermoformage, Re étant la résistance à l'écrasement entre deux faces d'un objet et P son poids.</p>		

**UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION**

Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publiant des demandes internationales en vertu du PCT.

AL	Albanie	ES	Espagne	LS	Lesotho	SI	Slovénie
AM	Arménie	FI	Finlande	LT	Lituanie	SK	Slovaquie
AT	Autriche	FR	France	LU	Luxembourg	SN	Sénégal
AU	Australie	GA	Gabon	LV	Lettonie	SZ	Swaziland
AZ	Azerbaïdjan	GB	Royaume-Uni	MC	Monaco	TD	Tchad
BA	Bosnie-Herzégovine	GE	Géorgie	MD	République de Moldova	TG	Togo
BB	Barbade	GH	Ghana	MG	Madagascar	TJ	Tadjikistan
BE	Belgique	GN	Guinée	MK	Ex-République yougoslave de Macédoine	TM	Turkménistan
BF	Burkina Faso	GR	Grèce	ML	Mali	TR	Turquie
BG	Bulgarie	HU	Hongrie	MN	Mongolie	TT	Trinité-et-Tobago
BJ	Bénin	IE	Irlande	MR	Mauritanie	UA	Ukraine
BR	Brésil	IL	Israël	MW	Malawi	UG	Ouganda
BY	Bélarus	IS	Islande	MX	Mexique	US	Etats-Unis d'Amérique
CA	Canada	IT	Italie	NE	Niger	UZ	Ouzbékistan
CF	République centrafricaine	JP	Japon	NL	Pays-Bas	VN	Viet Nam
CG	Congo	KE	Kenya	NO	Norvège	YU	Yougoslavie
CH	Suisse	KG	Kirghizistan	NZ	Nouvelle-Zélande	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	République populaire démocratique de Corée	PL	Pologne		
CM	Cameroun	KR	République de Corée	PT	Portugal		
CN	Chine	KZ	Kazakstan	RO	Roumanie		
CU	Cuba	LC	Sainte-Lucie	RU	Fédération de Russie		
CZ	République tchèque	LI	Liechtenstein	SD	Soudan		
DE	Allemagne	LK	Sri Lanka	SE	Suède		
DK	Danemark	LR	Libéria	SG	Singapour		
EE	Estonie						

PROCEDE DE PREPARATION D'UNE COMPOSITION THERMOPLASTIQUE A  
BASE DE POLYOLEFINES, COMPOSITION OBTENUE ET APPLICATION  
A LA FABRICATION D'OBJETS A TROIS DIMENSIONS

5 L'invention concerne un procédé de  
préparation d'une composition thermoplastique à base de  
polyoléfines pour la fabrication d'objets à trois  
dimensions, en particulier conditionnements ou emballages  
de parois de faible épaisseur, notamment pour produits  
10 alimentaires. Elle vise tout particulièrement des  
compositions à base de polypropylènes destinées à être  
thermoformées.

Le pourcentage de conditionnements ou  
emballages de produits alimentaires fabriqués par  
15 thermoformage de polyoléfines, en particulier de  
polypropylènes, est actuellement de l'ordre de 20% et croît  
fortement chaque année, ceci pour la raison essentielle que  
ces matières sont facilement recyclables. Ces  
conditionnements ou emballages sont généralement palettisés  
20 et une de leurs premières qualités est de bénéficier d'une  
résistance à l'écrasement entre les deux faces porteuses  
(Re) qui soit suffisante pour éviter un endommagement de  
l'emballage ou du conditionnement. Ainsi, cette résistance  
minimale à l'écrasement est une spécification qui  
25 conditionne la quantité de matière à mettre en œuvre et,  
donc, le prix du conditionnement et son poids P. Des taxes  
parafiscales fonction du poids sont appliquées sur ces  
produits dans la plupart des pays pour financer leur  
recyclage et on comprend que le ratio Re/P constitue le  
30 paramètre critique sur lequel porte l'effort de recherche  
des industries du conditionnement.

Il est connu dans le domaine des matières  
thermoplastiques qu'une incorporation d'une charge minérale

peut abaisser le prix de revient de la matière et augmenter le module d'élasticité en flexion de celle-ci. Par exemple, les brevets EP-0 353 991 et EP-0 129 890 décrivent l'incorporation dans un polypropylène d'une charge minérale  
5 telle que carbonate ou sulfate de calcium, talc, mica... dans une proportion pondérale élevée (50% à 80% pour le premier brevet, 19 à 69% pour le second). Toutefois, ce type d'incorporation conduit à une augmentation très sensible du poids de l'emballage car la très importante  
10 augmentation de densité du composé minéral ajouté (par exemple densité moyenne d'un polypropylène pur : 0,9, densité moyenne des charges minérales précitées : 2,8) n'est pas compensée, et de loin, par l'augmentation du module d'élasticité en flexion de la matière obtenue ; si  
15 l'on travaille à résistance à l'écrasement constante, le poids de l'objet terminé est nettement plus élevé, de sorte que dans la plupart des pays, le montant des taxes de recyclage fait perdre tout intérêt à l'incorporation de telles charges (le gain obtenu sur la quantité de  
20 polypropylène étant inférieur à l'accroissement des coûts dus aux taxes). Le brevet EP-0 476 926 décrit également une composition à base de polypropylène dans laquelle est incorporée une poudre de talc en plus faible proportion que dans les cas précédents, mais il ne semble pas que cette  
25 adjonction conduise à des avantages significatifs pour ce qui concerne le ratio Re/P. Pour ces raisons, les industriels ont renoncé à incorporer des charges minérales dans les polyoléfines destinées à la fabrication des conditionnements ou emballages ; les seuls produits ajoutés  
30 (en très faible proportion de l'ordre de 1%) sont des produits fonctionnels tels que pigments (dioxyde de titane), agents antistatiques (monostéarate de glycérol) ou autres additifs.

Il convient de souligner que certaines compositions thermoplastiques sont destinées à la réalisation de feuilles par calandrage et ne posent évidemment pas le problème de résistance à l'écrasement des  
5 objets à trois dimensions sus-visés. Par exemple, le brevet FR-2 358 439 (correspondant au brevet GB 1.575.010) décrit l'incorporation d'un pourcentage pondéral compris entre 10% et 60%, préférentiellement 15% à 45%, de farine d'ardoise, dolomie, barytine, carbonate de calcium, kaolin, gypse ou  
10 talc, dans un polypropylène destiné au calandrage de feuilles. D'après ce document antérieur, l'ajout de ces pourcentages élevés de charges minérales faciliterait le calandrage.

Par ailleurs, dans certaines applications  
15 particulières, par exemple pour rendre déchirable un film en polypropylène (brevet EP-0 659 815), il est ajouté une charge minérale (talc, carbonate de calcium, silice, argile, terres diatomées...) à la matière thermoplastique destinée à former le film par calandrage ; cette charge  
20 réduit la force nécessaire pour obtenir la déchirure du film à partir d'une encoche.

La présente invention se propose de préparer une composition thermoplastique à base de polyoléfines en vue de la fabrication d'un objet à trois  
25 dimensions, en particulier un objet à parois de faible épaisseur (c'est-à-dire inférieure à 2,5 mm), ladite composition permettant d'accroître le rapport  $Re/P$  de l'objet ( $Re$  : résistance à l'écrasement entre deux faces de celui-ci ;  $P$  : poids de l'objet) par rapport aux objets  
30 réalisés à partir des compositions thermoplastiques actuellement connues.

Un objet de l'invention est ainsi, à résistance à l'écrasement  $Re$  constante, de réduire

significativement le poids de l'objet et donc le montant des taxes de recyclage et son coût propre de fabrication (moindre quantité de matière totale, moindre quantité de polyoléfines dont une fraction est remplacée par un  
5 matériau moins cher).

Un autre objectif est de fournir une composition thermoplastique susceptible d'être mise en œuvre par thermoformage en bénéficiant de gains significatifs de productivité.

10 A cet effet, le procédé de préparation de la composition thermoplastique à base de polyoléfines conforme à l'invention se caractérise en ce que l'on incorpore aux polyoléfines du talc en pourcentage pondéral sensiblement compris entre 5% et 25%, se présentant sous la  
15 forme d'une poudre d'indice de lamellarité supérieur ou égal à 1,4 et de répartition granulométrie telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur ou égal à 18 microns et que le diamètre médian  $D_{50}$  soit inférieur ou égal à 6 microns.

20 Par "poudre", on entend aussi bien un produit non compacté dans lequel les particules sont libres les unes par rapport aux autres, qu'un produit densifié où les particules ou certaines particules sont provisoirement liées en agglomérats.

25 Par "diamètre médian  $D_{50}$ ", on entend un diamètre tel que 50% des particules en poids ont une taille inférieure audit diamètre ; par "diamètre de coupure  $D_{95}$ ", on entend un diamètre tel que 95% des particules en poids ont une taille inférieure audit diamètre. Pour des  
30 particules non sphériques, la taille est constituée par le diamètre sphérique équivalent (diamètre de Stokes). Toutes les mesures des diamètres  $D_{50}$  et  $D_{95}$  sont effectuées au moyen d'un appareil "Sédigraph" (marque déposée) par

sédimentation par gravité conformément à la norme AFNOR X11-683.

"L'indice de lamellarité" caractérise la forme de la particule et plus particulièrement son aplatissement (grande dimension/épaisseur). Cet indice de lamellarité est mesuré par l'écart entre, d'une part, la valeur de la dimension moyenne ( $D_m$ ) des particules de la poudre obtenue par une mesure de granulométrie par diffraction laser en voie humide, (norme AFNOR NFX11-666) et d'autre part, la valeur du diamètre médian ( $D_{50}$ ) obtenue par une mesure par sédimentation au moyen d'un "Sédigraph" (norme AFNOR X11-683), cet écart ( $D_m - D_{50}$ ) étant rapporté au diamètre médian  $D_{50}$  : indice de lamellarité =  $\frac{D_m - D_{50}}{D_{50}}$ .

On pourra se reporter à l'article "G. BAUDET et J.P RONA, Ind. Min. Mines et Carr. Les Techn. juin juillet 1990 pp 55-61" qui montre que cet indice est corrélé au rapport moyen de la plus grande dimension de la particule à sa plus petite dimension. Un indice de lamellarité supérieur à 1,4 caractérise un talc exceptionnel ayant des particules très allongées (l'indice de lamellarité de particules sphériques est 0). Il est à noter qu'il existe de nombreux autres paramètres permettant de caractériser la forme de particules minérales, en particulier le paramètre anglo-saxon désigné "Average Aspect Ratio". Cet "Average Aspect Ratio" est défini par le rapport entre le diamètre moyen des particules mesurées par microscopie électronique à balayage et leur épaisseur moyenne également mesurée par microscopie électronique à balayage. Les deux paramètres : indice de lamellarité et "Average Aspect Ratio" sont liés par une proportionnalité linéaire et la courbe correspondante pour le talc est fournie à la figure unique du dessin annexé. Il convient de souligner que, dans le brevet EP-0 476 926, l'"Average Aspect Ratio" de la poudre

incorporée est compris entre 3 et 20, préférentiellement entre 7 et 20, et plus préférentiellement entre 10 et 20. Ce brevet enseigne donc à l'homme du métier qu'il convient de choisir un "Average Aspect Ratio" inférieur à 20 pour  
5 obtenir une composition ayant des caractéristiques mécaniques satisfaisantes, c'est-à-dire un indice de lamellarité inférieur à 1 (comme le montre la courbe de correspondance du dessin).

On entend par "talc" soit le minéral  
10 silicate de magnésium hydraté, soit le minéral chlorite (silicate de magnésium et d'aluminium hydraté), soit un mélange des deux, associé le cas échéant à d'autres minéraux (dolomite, ...), soit encore, une substance minérale issue du talc et présentant des propriétés  
15 analogues.

Les inventeurs ont mis en évidence que, de façon inattendue, l'adjonction dans la matière thermoplastique d'un type de talc particulier dans une plage particulière de pourcentage permet d'augmenter d'au  
20 moins 4% le rapport Re/P des objets à trois dimensions réalisés par thermoformage, et ce malgré la densité plus élevée de talc ajouté. Comme les exemples comparatifs fournis plus loin l'illustreront, cet effet n'est obtenu qu'avec l'incorporation d'un type de talc spécifique  
25 combinant un indice de lamellarité  $> 1,4$ , un  $D_{95} < 18$  microns et un  $D_{50} < 6$  microns, le pourcentage pondéral de talc ne devant pas dépasser 25% (au-delà, l'augmentation de la densité apparente de la composition devenant trop forte par rapport au gain en résistance à l'écrasement obtenu).  
30 La valeur de l'indice de lamellarité, supérieure ou égale à 1,4, de préférence comprise entre 1,4 et 10, et très préférentiellement entre 1,4 et 3,6 est le paramètre critique pour obtenir cette amélioration significative de

rapport Re/P. Il convient de souligner qu'une telle valeur supérieure à 1,4 est un indice exceptionnel que ne présentent que de très rares talcs. Les talcs courants (99% des talcs existants sur le marché) ont un indice de lamellarité compris entre 0,4 et 1 et ne permettent pas d'obtenir le résultat ci-dessus énoncé, quelle que soit leur granulométrie.

Cette augmentation significative de la résistance à l'écrasement de l'objet obtenu à partir de la composition conforme à l'invention n'est pas expliquée à l'heure actuelle et tient probablement à une orientation privilégiée que prennent les particules de talc dans la matière lorsque l'opération de formage à chaud est réalisée. Il ne semble pas que d'autres minéraux donnent le même effet.

La composition conforme à l'invention dans laquelle sont dispersées les particules de talc précitées bénéficie d'un montant réduit des taxes de recyclage en raison de son moindre poids et d'un coût de fabrication très réduit (de 8 à 10% environ : réduction de la quantité totale de matière utilisée, substitution d'une fraction des polyoléfines par du talc beaucoup moins cher).

Dans la majorité des cas visant en particulier l'application de la composition à la fabrication d'emballages ou de conditionnement de produits alimentaires, les polyoléfines utilisées sont des polypropylènes, homopolymères et/ou copolymères, ayant un indice de fluidité sensiblement compris entre 0,5 et 5 g par 10 mn à 230°C sous 2,16 kg (norme ISO R 1131).

Les avantages sus-indiqués sont optimisés en utilisant préférentiellement un talc ayant les caractéristiques suivantes :

- (comme déjà évoqué) indice de lamellarité sensiblement compris entre 1,4 et 10, et préférentiellement entre 1,4 et 3,6,

- répartition granulométrique telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur à 15 microns et le diamètre médian  $D_{50}$  soit sensiblement compris entre 0,5 et 5 microns,

- talc de type macrocristallin (dont le caractère lamellaire est le plus prononcé), ce talc étant prébroyé pour présenter la répartition granulométrique précitée.

Par "talc macrocristallin", on entend un talc qui contient naturellement des cristaux élémentaires de grande dimension (notamment supérieure à 15 microns avant le prébroyage) observables sur des lames minces, par opposition à des talcs microcristallins ayant naturellement des cristaux élémentaires de faible dimension.

Le pourcentage pondéral de talc qui paraît donner le meilleur résultat dans la plupart des cas est sensiblement compris entre 10% et 20%.

L'incorporation du talc dans les polyoléfines peut être réalisée de façon traditionnelle dans des extrudeuses, notamment bi-vis, permettant une dispersion sensiblement homogène dans la matière plastique. Bien entendu, certains additifs classiques tels que pigments, agents anti-statiques... peuvent également être ajoutés à la composition.

Le talc peut être directement incorporé aux polyoléfines dans les proportions sus-indiquées. Toutefois, selon un mode de mise en œuvre préférentiel, l'on prépare préalablement un mélange concentré sous forme de granulés comprenant des polyoléfines et un pourcentage pondéral de talc compris entre 60% et 80%, et on dilue ensuite ce

mélange concentré avec des polyoléfines de façon à obtenir le pourcentage pondéral précité talc/polyoléfines. Ainsi, la transformation du matériau plastique utilise uniquement des granulés (mélange concentré et polyoléfines) sans manipulation de poudres qui sont mises en œuvre chez le fournisseur de mélange maître qui possède le savoir-faire correspondant. Pour fabriquer ce mélange concentré, on peut avantagement utiliser le procédé visé dans le brevet FR-2 714 326, dans lequel le talc est préalablement aggloméré en granulés aptes à se désagréger lors de l'incorporation dans les polyoléfines.

L'invention s'étend à la composition thermoplastique préparée conformément au procédé précédemment défini ainsi qu'au mélange concentré sus-évoqué.

L'invention s'étend à un procédé de fabrication d'un objet à trois dimensions caractérisé en ce que, en vue d'accroître le rapport  $Re/P$  de l'objet, où  $Re$  est sa résistance à l'écrasement entre deux faces et  $P$  son poids, on choisit pour réaliser le thermoformage, une composition thermoplastique du type précédemment défini, c'est-à-dire contenant du talc en pourcentage sensiblement compris entre 5% et 25%, se présentant sous forme de particules dispersées dans les polyoléfines, d'indice de lamellarité supérieur ou égal à 1,4 et de granulométrie telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur ou égal à 18 microns et que le diamètre médian  $D_{50}$  soit inférieur ou égal à 6 microns. Pour fabriquer le produit à trois dimensions, la composition est mise en œuvre par thermoformage soit à l'état fondu ("Melt phase"), soit en phase solide sous pression ("SPPF : Solide phase pressure forming"). On peut constater des gains de productivité remarquables (temps de cycle raccourcis) pouvant atteindre

30 à 40%. Le talc incorporé augmente la conductibilité thermique du polymère et donc réduit la durée des cycles de chauffage et refroidissement.

Un tel objet (conditionnement, emballage, conteneur...) se caractérise par un rapport Re/P augmenté d'au moins 4% par comparaison à un objet de même forme extérieure réalisé à partir des mêmes polyoléfines en l'absence de talc.

La figure unique du dessin annexé fournit, dans le cas du talc, la courbe de correspondance entre l'indice de lamellarité utilisé dans la description et dans les exemples et le paramètre anglo-saxon "Average Aspect Ratio". Les exemples 1 à 5 qui suivent illustrent le procédé de l'invention, cependant que les essais comparatifs C1, C2 et C3 décrivent des fabrications de caractéristiques différentes afin d'illustrer, par comparaison, l'efficacité de l'invention.

Exemple 1 :

On utilise un polypropylène homopolymère fabriqué par la Société MONTELL sous la dénomination "JE 6100", sous la forme de granulés, ayant un indice de fluidité voisin de 2.

Afin de préparer un mélange concentré, du talc (produit macrocristallin broyé, taux pondéral de chlorite : 3,5%, surface spécifique BET : 7 m<sup>2</sup>/g) de caractéristiques indiquées dans le tableau I est mélangé au polypropylène à l'état fondu dans une extrudeuse bi-vis, type "Clextral BC21", de façon à obtenir un pourcentage pondéral de talc de 75%. Le mélange concentré se présente sous la forme de granulés de taille moyenne de 2 mm.

Le mélange concentré est ensuite dilué avec le même polypropylène homopolymère de façon à obtenir un taux pondéral de talc de 15% dans le mélange final,

directement dans une extrudeuse de type "Reifenhäuser RM 801" apte à assurer un calandrage du mélange en nappe d'épaisseur constante égale à 950  $\mu\text{m}$  et de largeur 315 mm ; ladite nappe est thermoformée par le procédé "SPPF" sur une machine "Illig type RDM53K" munie d'un système de préchauffage (chauffage à des températures proches de la température de fusion du mélange : 155°C, et formage sous une pression de 6,5 bars dans un moule en trois dimensions).

L'objet fini est une barquette de forme générale parallélépipédique rectangle, évasée vers sa face ouverte opposée au fond, (dimensions : hauteur 6 cm, longueur 13 cm, largeur 9 cm), elle est éjectée du moule grâce à un système d'air comprimé. La caractérisation de l'objet se fait par une mesure de résistance à l'écrasement entre son fond et sa face ouverte sur un dynamomètre de type "Adamel Lhomargy DY24" muni de capteurs de force. La mesure de force en Newton se fait à une vitesse de 100 mm/min après déformation en compression de 7 mm. Les paramètres essentiels et les résultats obtenus sont résumés dans le tableau I ci-dessous :

TABLEAU I	Exemple 1
Résistance à l'écrasement (N) Re	130
% Talc	15
Indice de lamellarité	1,4
D <sub>95</sub> ( $\mu\text{m}$ )	10
D <sub>50</sub> ( $\mu\text{m}$ )	4,0
Poids P de l'objet fini (g)	11,8
Re/P	11,0

Exemple 2 :

La composition visée à cet exemple est fabriquée de façon identique à celle de l'exemple 1 avec le même pourcentage de talc, mais ce dernier d'un gisement

différent, (produit macrocristallin broyé, taux pondéral de chlorite : 2,5% ; surface spécifique BET : 5 m<sup>2</sup>/g) présente les caractéristiques indiquées au Tableau II. L'objet fini est préparé de la même façon que celui de l'exemple 1. Le tableau II ci-dessous résume les résultats obtenus et paramètres essentiels mis en œuvre :

TABLEAU I	Exemple 2
Résistance à l'écrasement (N) Re	130
% Talc	15
Indice de lamellarité	1,5
D <sub>95</sub> (µm)	13
D <sub>50</sub> (µm)	4,4
Poids P de l'objet fini (g)	11,6
Re/P	11,2

Essai comparatif C1 :

La composition de cet essai comparatif C1 ne contient que du polypropylène sans addition de charge. L'objet fini est préparé de la même façon que ceux des exemples 1 et 2 mais en extrudant une nappe plus épaisse, d'épaisseur égale à 1100 µm, de façon à obtenir une résistance à l'écrasement égale pour l'objet fini.

Essais comparatifs C2, C3 :

Des compositions fabriquées de façon analogue à celles des exemples 1 et 2 contiennent des talcs décrits dans le tableau III, ayant respectivement un diamètre de coupure D<sub>95</sub> égal à 20 µm pour le premier et un indice de lamellarité inférieur à 1,3 pour le second. Les objets finis sont préparés de la même façon que ceux des exemples 1 et 2 en partant d'une nappe d'épaisseur égale à 950 µm.

Le tableau III ci-dessous reprend les données des tableaux I et II et résume les paramètres et résultats des exemples comparatifs C1, C2, C3.

TABLEAU III	Exemple 1	Exemple 2	Essai comparatif C1	Essai comparatif C2	Essai comparatif C 3
Résistance à l'écrasement $R_e$ (N)	130	130	130	130	130
% Talc	15	15	0	15	15
Indice de lamellarité	1,4	1,5	-	1,3	1,0
$D_{95}$ ( $\mu\text{m}$ )	10	13	-	20	15
$D_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	4,0	4,4	-	7,3	4,7
Poids P de l'objet fini (g)	11,8	11,6	12,5	12,6	13,8
Re/P	11,0	11,2	10,4	10,3	9,4

Ce tableau montre que seul le type de talc visé par l'invention ayant un haut indice de lamellarité associé à une granulométrie fine telle que décrite permet de réaliser une barquette en polypropylène dont le rapport Re/P soit augmenté. L'augmentation de ce rapport est d'environ 10% par rapport à l'essai comparatif C1 (pas de charge) et à l'essai comparatif C2 (talc relativement lamellaire mais de granulométrie différente), et est d'environ 17% par rapport à l'essai comparatif C3 (charge constituée par un talc de lamellarité standard). Cet essai comparatif C3 conduit à un rapport Re/P qui est inférieur à celui de l'essai C1 mis en œuvre en l'absence complète de talc ; cet essai met en lumière le caractère essentiel de l'indice de lamellarité qui doit être supérieur à 1,4 pour autoriser l'obtention d'un rapport Re/P significativement augmenté. Cet effet est totalement inattendu.

Exemples 3, 4 et 5 :

Les compositions visées aux exemples 3, 4 et 5 sont fabriquées de façon identique à celle de l'exemple 1 avec le même pourcentage de talc (15%), le talc ayant fait l'objet d'un broyage différent conformément au procédé décrit dans la demande internationale

PCT/FR 98/00569 afin de lui conférer les indices de lamellarité suivants : exemple 3 : 2,9 ; exemple 4 : 3,6 ; exemple 5 : 10.

L'objet fini est préparé de la même façon que celui de l'exemple 1.

Le tableau IV ci-dessous résume les résultats obtenus et paramètres essentiels mis en œuvre.

TABLEAU IV	Exemple 3	Exemple 4	Exemple 5
Re (N)	130	130	130
% Talc	15	15	15
Indice de lamellarité	2,9	3,6	10
D <sub>95</sub> (µm)	7,9	8,5	5,5
D <sub>50</sub> (µm)	1,8	2,3	0,8
Poids P de l'objet (g)	11,5	11,2	11,1
Re/P	11,3	11,6	11,7

Dans les trois exemples, on constate une amélioration significative du rapport Re/P (par rapport aux essais comparatifs). Cette amélioration croît avec l'indice de lamellarité, mais en pratique on aura intérêt à se limiter à un indice de lamellarité inférieur à 10 car, au-delà, les talcs sont très chers. En pratique, une plage de 1,4 à 3,6 conduit à une économie maximale sur l'objet fabriqué (compte tenu du prix croissant du talc au-delà de cette valeur).

## REVENDEICATIONS

1/ - Procédé de préparation d'une composition thermoplastique à base de polyoléfines pour la fabrication d'objets à trois dimensions, en particulier conditionnements ou emballages, caractérisé en ce que l'on incorpore aux polyoléfines du talc en pourcentage pondéral sensiblement compris entre 5% et 25%, se présentant sous la forme d'une poudre d'indice de lamellarité supérieur ou égal à 1,4 et de répartition granulométrique telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur ou égal à 18 microns et que le diamètre médian  $D_{50}$  soit inférieur ou égal à 6 microns.

2/ - Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on incorpore aux polyoléfines une poudre de talc ayant un indice de lamellarité sensiblement compris entre 1,4 et 10, préférentiellement entre 1,4 et 3,6.

3/ - Procédé selon l'une des revendications 1 ou 2, caractérisé en ce que l'on incorpore aux polyoléfines une poudre de talc ayant une répartition granulométrique telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur à 15 microns et le diamètre médian  $D_{50}$  soit sensiblement compris entre 0,5 et 5 microns.

4/ - Procédé selon l'une des revendications 1, 2 ou 3, caractérisé en ce que l'on incorpore aux polyoléfines un pourcentage pondéral de talc sensiblement compris entre 10% et 20%.

5/ - Procédé selon l'une des revendications 1, 2, 3 ou 4, caractérisé en ce que l'on incorpore aux polyoléfines un talc de type macrocristallin, broyé pour présenter la répartition granulométrique précitée.

6/ - Procédé selon l'une des revendications 1, 2, 3, 4 ou 5, caractérisé en ce que l'on prépare

préalablement un mélange concentré sous forme de granulé comprenant les polyoléfines et un pourcentage pondéral de talc compris entre 60% et 80%, et on dilue ce mélange concentré avec des polyoléfines de façon à obtenir le  
5 pourcentage pondéral précité talc/polyoléfines.

7/- Procédé selon l'une des revendications 1 à 6, dans lequel le talc est incorporé aux polyoléfines dans une extrudeuse dans des conditions appropriées pour obtenir une dispersion sensiblement homogène.

10 8/- Procédé selon l'une des revendications 1 à 7, dans lequel on utilise comme polyoléfines des polypropylènes, homopolymères et/ou copolymères, ayant un indice de fluidité sensiblement compris entre 0,5 et 5 g par 10 mn à 230°C sous 2,16 kg (norme ISO R1113).

15 9/ - Composition thermoplastique comprenant des polyoléfines, caractérisée en ce qu'elle comprend du talc en pourcentage sensiblement compris entre 5% et 25%, se présentant sous forme de particules dispersées dans les polyoléfines, d'indice de lamellarité supérieur ou égal à  
20 1,4 et de granulométrie telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur ou égal à 18 microns et que le diamètre médian  $D_{50}$  soit inférieur ou égal à 6 microns.

10/ - Composition thermoplastique selon la revendication 9, à base de polypropylènes, comprenant un  
25 pourcentage pondéral de talc sensiblement compris entre 10% et 20%.

11/ - Mélange concentré de polyoléfines et de talc en vue de la préparation d'une composition thermoplastique conforme à l'une des revendications 9 ou  
30 10, caractérisé en ce qu'il comprend du talc en pourcentage sensiblement compris entre 60% et 80%, se présentant sous forme de particules dispersées dans les polyoléfines, d'indice de lamellarité supérieur ou égal à 1,4 et de

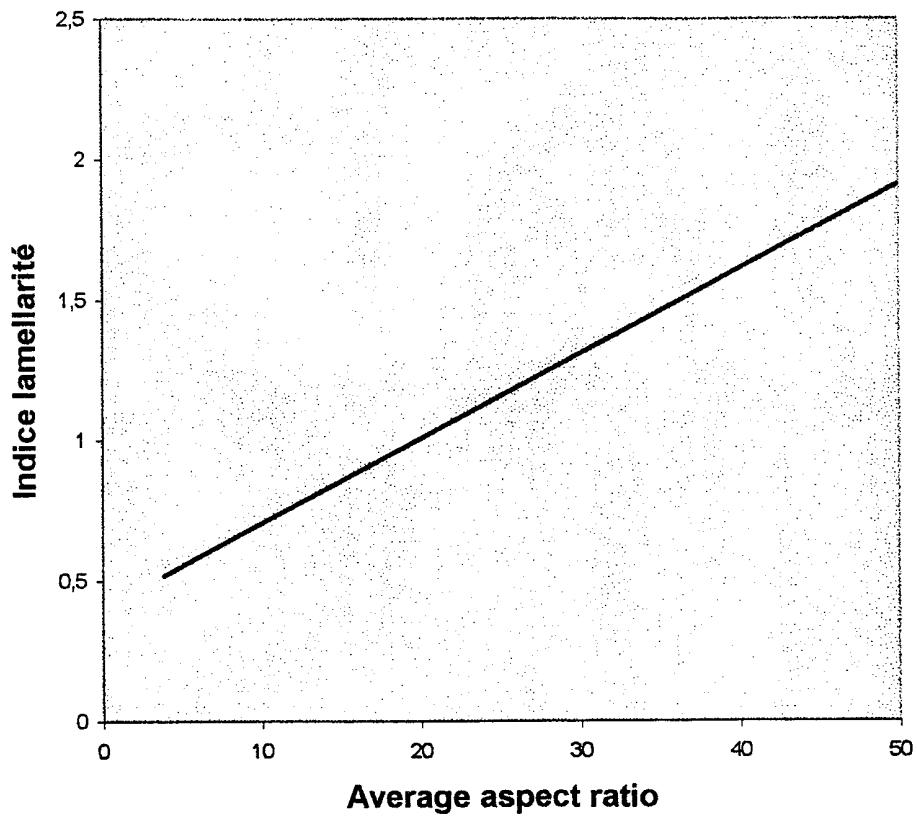
granulométrie telle que le diamètre de coupure  $D_{95}$  soit inférieur ou égal à 18 microns et que le diamètre médian  $D_{50}$  soit inférieur ou égal à 6 microns.

12/ - Procédé de fabrication d'un objet à  
5 trois dimensions, caractérisé en ce que, en vue d'accroître le rapport  $Re/P$  de l'objet, où  $Re$  est sa résistance à l'écrasement entre deux faces et  $P$  son poids, on thermoforme une nappe réalisée à partir d'une composition thermoplastique conforme à l'une des revendications 9 ou  
10 10.

13/ - Objet à trois dimensions, en particulier conditionnement ou emballage, réalisé par mise en œuvre du procédé selon la revendication 12, se caractérisant par un rapport  $Re/P$  augmenté d'au moins 4%  
15 par comparaison à un objet de même forme extérieure réalisé à partir des mêmes polyoléfines en l'absence de talc.

1/1

FIGURE UNIQUE



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/FR 98/02637

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 IPC 6 C08K7/10 C08K3/34

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 129 890 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 2 January 1985 see page 5, line 10 - page 11, line 32 ---	1-13
Y	GB 1 575 010 A (ICI LTD) 17 September 1980 cited in the application see page 3, line 21 - line 26 ---	1-5,7-13
Y	DE 27 03 810 A (BASF AG) 10 August 1978 see page 2 ---	6
X	EP 0 476 926 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 25 March 1992 see table 3 -----	1-13

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 February 1999

Date of mailing of the international search report

25/03/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Schmidt, H

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/FR 98/02637

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0129890 A	02-01-1985	JP 1747655 C	25-03-1993
		JP 4031936 B	27-05-1992
		JP 60172639 A	06-09-1985
		JP 1603591 C	04-04-1991
		JP 2027220 B	15-06-1990
		JP 60172640 A	06-09-1985
		JP 60008344 A	17-01-1985
		JP 3069522 B	01-11-1991
		JP 60007817 A	16-01-1985
		JP 1834808 C	11-04-1994
		JP 2050851 B	05-11-1990
		JP 60008036 A	16-01-1985
		CA 1255424 A	06-06-1989
		DE 3486322 D	11-08-1994
		DE 3486322 T	27-10-1994
US 4578296 A	25-03-1986		
GB 1575010 A	17-09-1980	AU 2678577 A	11-01-1979
		BE 856783 A	13-01-1978
		DD 134358 A	21-02-1979
		DE 2731479 A	19-01-1978
		FR 2358439 A	10-02-1978
		JP 53027640 A	15-03-1978
		NL 7707618 A	17-01-1978
		PT 66792 B	19-12-1978
		SE 7708099 A	14-01-1978
		US T973011 I	01-08-1978
		DE 2703810 A	10-08-1978
EP 0476926 A	25-03-1992	JP 2510347 B	26-06-1996
		JP 4120145 A	21-04-1992
		JP 2071835 C	25-07-1996
		JP 4126755 A	27-04-1992
		JP 7110915 B	29-11-1995
		CA 2051131 A	13-03-1992
		DE 69118071 D	25-04-1996
		DE 69118071 T	29-08-1996
		KR 9609294 B	18-07-1996
		US 5219913 A	15-06-1993

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

De l'Office International No  
PCT/FR 98/02637

<b>A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE</b> CIB 6 C08K7/10 C08K3/34		
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB		
<b>B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE</b>		
Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) CIB 6 C08K		
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche		
Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS</b>		
Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
Y	EP 0 129 890 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 2 janvier 1985 voir page 5, ligne 10 - page 11, ligne 32 ---	1-13
Y	GB 1 575 010 A (ICI LTD) 17 septembre 1980 cité dans la demande voir page 3, ligne 21 - ligne 26 ---	1-5,7-13
Y	DE 27 03 810 A (BASF AG) 10 août 1978 voir page 2 ---	6
X	EP 0 476 926 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 25 mars 1992 voir tableau 3 -----	1-13
<input type="checkbox"/> Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents <input checked="" type="checkbox"/> Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe		
° Catégories spéciales de documents cités:		
"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée) "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens "P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée		"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention "X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément "Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier "&" document qui fait partie de la même famille de brevets
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée  18 février 1999		Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale  25/03/1999
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tél. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Fonctionnaire autorisé  Schmidt, H

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Den e Internationale No

PCT/FR 98/02637

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 0129890 A	02-01-1985	JP 1747655 C	25-03-1993
		JP 4031936 B	27-05-1992
		JP 60172639 A	06-09-1985
		JP 1603591 C	04-04-1991
		JP 2027220 B	15-06-1990
		JP 60172640 A	06-09-1985
		JP 60008344 A	17-01-1985
		JP 3069522 B	01-11-1991
		JP 60007817 A	16-01-1985
		JP 1834808 C	11-04-1994
		JP 2050851 B	05-11-1990
		JP 60008036 A	16-01-1985
		CA 1255424 A	06-06-1989
		DE 3486322 D	11-08-1994
		DE 3486322 T	27-10-1994
		US 4578296 A	25-03-1986
GB 1575010 A	17-09-1980	AU 2678577 A	11-01-1979
		BE 856783 A	13-01-1978
		DD 134358 A	21-02-1979
		DE 2731479 A	19-01-1978
		FR 2358439 A	10-02-1978
		JP 53027640 A	15-03-1978
		NL 7707618 A	17-01-1978
		PT 66792 B	19-12-1978
		SE 7708099 A	14-01-1978
		US T973011 I	01-08-1978
		DE 2703810 A	10-08-1978
EP 0476926 A	25-03-1992	JP 2510347 B	26-06-1996
		JP 4120145 A	21-04-1992
		JP 2071835 C	25-07-1996
		JP 4126755 A	27-04-1992
		JP 7110915 B	29-11-1995
		CA 2051131 A	13-03-1992
		DE 69118071 D	25-04-1996
		DE 69118071 T	29-08-1996
		KR 9609294 B	18-07-1996
		US 5219913 A	15-06-1993