

ROYAUME DE BELGIQUE

SPF ECONOMIE, P.M.E.,
CLASSES MOYENNES & ENERGIE

Office de la Propriété intellectuelle

NUMERO DE PUBLICATION : 1020760A3

NUMERO DE DEPOT : 2012/0419

Classif. Internat. : C08J

Date de délivrance le : 01 Avril 2014

Le Ministre de l'Economie,

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d'invention, notamment l'article 22;

Vu l'arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d'invention, notamment l'article 28;

Vu le procès verbal dressé le 21 Juin 2012 à 14H25 à l'Office de la Propriété Intellectuelle

ARRETE:Article unique.-Il est délivré à : NMC SA
Gert-Noël-Strasse, B-4731 EYNATTEN(BELGIQUE)

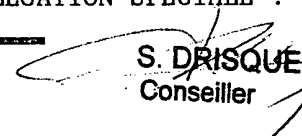
représenté(e)(s) par : CLAEYS Pierre, GEVERS, Holidaystraat 5 - B 1831 DIEGEM.

un brevet d'invention d'une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : MOUSSES A BASE DE BUTENE ET D'ETHYLENE.

INVENTEUR(S) : Mayeres Jean-Pierre, Lindenweg 11, B-4700 Eupen (BE); Job Denis, Rue Vaudrée 12, B-4031 Angleur (BE); Zamorano Rafaël, Rue des Pinsonniers 3, B-4633 Melen-Soumagne (BE)

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l'invention, sans garantie du mérite de l'invention ou de l'exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeurs(s).

Pour expédition certifiée conforme

Bruxelles, le 01 Avril 2014
PAR DELEGATION SPECIALE :
DRISQUE S.
Conseiller
S. DRISQUE
Conseiller**.be**

Mousses à base de butène et d'éthylène

La présente invention concerne des mousses à base de butène et d'éthylène et plus particulièrement des mousses à base de butène-1 et d'éthylène.

- 5 Des mousses de polyéthylène et de LLDPE („linear low-density polyethylene“, un copolymère à base d'éthylène et d'une α -oléfine) sont déjà décrites par exemple dans le document EP1373401.

Le LLDPE utilisé est cependant un copolymère très riche en éthylène et pauvre en α -oléfine.

- 10 Les mousses obtenues présentent donc les caractéristiques de mousses à base de polyéthylène. Ces mousses ont en conséquence par exemple des propriétés isolantes relativement bonnes, mais une souplesse ou flexibilité trop faible pour certaines applications.

- D'autre part, des mousses à base d'un mélange de polyéthylène et d'un polymère à base d'une α -oléfine ou d'un copolymère à base d'éthylène et d'une α -oléfine sont également décrites dans le document DE102009028200.
- 15

- Ces mousses peuvent être plus riche en α -oléfine et en particulier en polybutène-1. Cependant, lorsque l'on utilise un mélange de polyéthylène et de polybutène-1 ou un mélange de polyéthylène et d'un copolymère d'éthylène et de butène-1, riche en butène-1, on obtient des mousses dont la tenue mécanique est mauvaise.
- 20

À cet égard, il est connu, que le polybutène-1 et le polyéthylène ne sont pas compatibles. Ils forment des phases distinctes (séparation de phase).

- 25 En effet, cette incompatibilité est même mise à profit, car des films d'un mélange de polybutène-1 et de polyéthylène sont utilisés comme films „easy peel“ (pelage facile). Ces films sont utilisés par exemple dans le

domaine de l'emballage pour permettre une ouverture aisée. Sous la contrainte le film se fissure et se fend rapidement.

Ces films, qui comportent des nodules de polybutène ou une phase riche en butène dispersé(s) dans une phase de polyéthylène ou riche en éthylène, sont fragilisés, car l'interface entre polyéthylène et polybutène est fragile. Au sein d'un tel film, les fissures se propagent facilement entre et/ou surtout au niveau des interfaces entre les nodules de polybutène ou d'une phase riche en butène dispersé(s) et le polyéthylène ou la phase riche en éthylène.

- 10 L'incompatibilité entre polybutène-1 et polyéthylène mène donc en conséquence à de mauvaises propriétés mécaniques.

Cependant pour certaines applications, il serait intéressant de disposer d'une mousse très flexible et possédant néanmoins de bonnes propriétés mécaniques.

- 15 Cela est possible grâce aux mousses à base de butène et d'éthylène selon la présente invention et selon la revendication indépendante 1. De plus, la présente invention concerne aussi un procédé de moussage permettant d'obtenir des mousses à base de butène et d'éthylène selon la présente invention et selon la revendication indépendante 12.

- 20 D'autres modes de réalisation des mousses et du procédé de moussage selon la présente invention sont décrits dans les revendications dépendantes.

- La présente invention concerne des mousses à base de butène et d'éthylène, qui comprennent au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène ainsi qu'au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, la température de fusion de ce dernier étant inférieure à 135 °C.

Cela permet d'obtenir des mousses très flexibles et possédant de bonnes propriétés mécaniques.

En effet, l'utilisation/l'ajout d'un polymère à base de butène et riche en butène-1 permet d'augmenter fortement la flexibilité/souplesse des mousses obtenues. Par ailleurs, cela permet également de conserver une excellente flexibilité/souplesse des mousses obtenues dans une large gamme de température. En particulier, cela permet d'assurer une bonne flexibilité/souplesse à haute température (par exemple supérieure à 40 °C) et/ou à basse température (par exemple inférieure à 20 °C).

D'autre part, le fait d'utiliser au moins un polymère à base de butène et riche en polybutène-1, dont la température de fusion est inférieure à 135 °C, permet de manière surprenante d'obtenir des mousses avec d'excellentes propriétés mécaniques. De plus, la composante polyéthylène permet d'obtenir de bonnes propriétés au niveau de l'isolation thermique. Par ailleurs, l'utilisation/l'ajout d'un polymère à base de butène et riche en butène-1 permet éventuellement d'améliorer encore ces propriétés d'isolation thermique.

Un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène peut être par exemple au moins un homopolymère ou au moins un copolymère d'éthylène. Un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène peut être par exemple au moins un polymère choisi dans le groupe suivant: du polyéthylène à très basse densité (PE-TBD/ULDPE), du polyéthylène à basse densité linéaire (PE-BDL/LLDPE), du polyéthylène à basse densité (PE-BD/LDPE), du polyéthylène à moyenne densité (PE-MD/MDPE), du polyéthylène à haute densité (PE-HD/HDPE), du polyéthylène à masse molaire très basse (ULMWPE), du polyéthylène à masse molaire élevée (HMWPE).

Un polymère à base d'éthylène peut également être par exemple au moins un copolymère, au moins un copolymère à blocs, au moins un

copolymère à gradient, au moins un copolymère statistique, au moins un copolymère greffé, au moins un interpolymère ou au moins un copolymère qui représente une combinaison de plusieurs de ces types de copolymères. Un copolymère étant un polymère qui comporte au moins deux monomères différents.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène, qui peut de préférence par exemple comprendre au moins 50 %, de préférence au moins 51 %, de préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins 75 %, de préférence au moins 80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 % ou au moins 99 % en masse d'éthylène. Riche en éthylène peut donc vouloir dire par exemple comprenant au moins 50 %, de préférence au moins 51 %, de préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins 75 %, de préférence au moins 80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 % ou au moins 99 % en masse d'éthylène. Cela permet par exemple d'obtenir des mousses possédant par exemple de bonnes propriétés d'isolation thermique.

Une mousse selon la présente invention peut dans un mode de réalisation comprendre par exemple du polyéthylène à basse densité (PE-BD/LDPE) comme polymère à base d'éthylène et riche en éthylène. Le polyéthylène à basse densité peut être obtenu par exemple par polymérisation radicalaire d'éthylène. Le taux de branchement du polyéthylène à basse densité est supérieur au taux de branchement du polyéthylène à haute densité (PE-HD/HDPE). Le polyéthylène à basse

densité peut par exemple avoir une densité d'environ 0,91 à 0,935 g/cm³.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène, dont la température de fusion déterminée par DSC peut par exemple être comprise entre 30 °C et 160 °C, de préférence entre 40 ° et 155 °C, de préférence entre 45 °C et 150 °C, de préférence entre 60 °C et 147 °C, de préférence entre 70 °C et 146 °C, de préférence entre 80 °C et 145 °C, de préférence entre 85 °C et 144 °C, de préférence entre 90 °C et 143 °C, de préférence entre 95 °C et 140 °C, de préférence entre 100 °C et 135 °C, de préférence entre 102,5 °C et 132,5 °C de préférence entre 105 °C et 130 °C, de préférence entre 105 °C et 115 °C ou entre 120 °C et 130 °C.

La température de fusion d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène déterminée par DSC peut par exemple dans le cas du polyéthylène à basse densité (PE-BD/LDPE) être comprise entre 90 °C et 120 °C, de préférence entre 105 °C et 118 °C, de préférence entre 105,5 °C et 117,5 °C, de préférence entre 106 °C et 117 °C de préférence entre 107 °C et 115 °C, de préférence entre 107,5 °C et 114,5 °C, de préférence entre 110 °C et 114,25 °C, de préférence entre 111 °C et 114 °C.

La température de fusion d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène, déterminée par DSC peut par exemple dans le cas du polyéthylène à haute densité (PE-HD/HDPE) être comprise entre 115 °C et 135 °C, de préférence entre 120 °C et 130 °C, de préférence entre 122,5 °C et 127,5 °C.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène, qui peut présenter un indice de fluidité (melt flow index ou melt

flow rate) par exemple mesuré à 190 °C avec une masse standard de 2,16 kg (norme ISO 1133), qui peut être compris par exemple entre 0,1 et 35 g/ 10 min, de préférence entre 0,15 et 30 g/ 10 min, de préférence entre 0,2 et 25 g/ 10 min, de préférence entre 0,225 et 12 g/ 10 min, de
5 préférence entre 0,25 et 8 g/ 10 min, de préférence entre 0,3 et 5 g/ 10 min, de préférence entre 0,325 et 4 g/ 10 min, de préférence entre 0,35 et 0,8 g/ 10 min, de préférence entre 0,6 et 0,7 g/ 10 min.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base de butène, qui peut de
10 préférence par exemple comprendre au moins 25 %, de préférence au moins 30 %, de préférence au moins 35 %, de préférence au moins 40 %, de préférence au moins 45 %, de préférence au moins 50 %, de préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 65 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins
15 75 %, de préférence au moins 80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 % ou au moins 99 % en masse de butène-1. Riche en butène-1 peut donc vouloir dire par exemple comprenant au moins 50 %, de préférence au moins 51 %, de
20 préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins 75 %, de préférence au moins 80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 % ou au moins 99 % en masse de butène-1. Cela permet
25 par exemple d'obtenir des mousses possédant une grande souplesse/flexibilité.

Un polymère à base de butène et/ou un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut/peuvent être par exemple un polymère comprenant du butène-1, du Z-butène-2, du E- butène-2 et/ou du 2-
30 méthylpropène.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui peut de préférence par exemple comprendre au moins 50 %, de préférence au moins 51 %, de préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 65 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins 75 %, de préférence au moins 80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 %, de préférence au moins 99 %, de préférence au moins 99.5 %, de préférence au moins 99.9 %, de préférence au moins 99.99 %, de préférence au moins 99.999 % en masse de butène-1. Cela permet d'obtenir des mousses possédant une grande souplesse/flexibilité. Par ailleurs, un polymère à base de butène et riche en butène-1 permet éventuellement aussi d'améliorer la tolérance aux additifs (charges) et/ou les propriétés d'isolation thermique.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui peut de préférence par exemple présenter un indice de fluidité (melt flow index ou melt flow rate) par exemple mesuré à 190 °C avec une masse standard de 2,16 kg (norme ISO 1133), qui peut être par exemple compris entre 0,3 et 2 g/ 10 min, de préférence entre 0,325 et 1,5 g/ 10 min, de préférence entre 0,35 et 1 g/ 10 min, de préférence entre 0,45 et 0,95 g/ 10, de préférence entre 0,4 et 0,6 g/ 10 min ou entre 0,7 et 0,9 g/ 10min.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui peut être par exemple un copolymère, un copolymère à blocs, un copolymère à gradient, un copolymère statistique, un copolymère greffé, un interpolymère ou un copolymère, qui représente une combinaison de plusieurs de ces types de copolymères. Un

- copolymère pouvant être un polymère qui comporte au moins deux monomères différents. L'ajout d'un second et/ou d'un autre monomère et l'utilisation d'un copolymère permet de modifier et/ou d'adapter la température de fusion d'un polymère à base de butène facilement. De plus, la structure/nature du copolymère peut également influencer la température de fusion. Cela permet par exemple de diminuer la température de fusion et/ou d'obtenir une température de fusion par exemple inférieure à 135 ° C tout en conservant les propriétés (et particulièrement la grande souplesse/flexibilité) du polybutène-1.
- 10 Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base de butène, qui peut être par exemple un copolymère comprenant du butène-1 et au moins une autre α -oléfine. Un polymère à base de butène peut être par exemple un copolymère comprenant du butène-1 et de l'éthylène et/ou du propylène.
- 15 L'utilisation polymère à base de butène, qui est un copolymère comprenant du butène-1 et au moins une autre α -oléfine, permet de diminuer la température de fusion du polymère à base de butène. En effet, l'incorporation d'au moins une autre α -oléfine, comme par exemple l'éthylène et/ou le propylène, dans un copolymère comprenant du butène-1 et au moins une autre α -oléfine peut éventuellement permettre par exemple de diminuer la température de fusion du copolymère par exemple par rapport à du polybutène-1. L'incorporation/l'ajout d'au moins une autre α -oléfine, comme par exemple l'éthylène et/ou le propylène, à un polymère à base de butène, pour obtenir un copolymère
- 20 comprenant du butène-1 et au moins une autre α -oléfine, peut en effet éventuellement perturber la cristallisation du polybutène-1 et la formation de domaines cristallins correspondants. Cela peut éventuellement par exemple mener à une diminution de la température de fusion du polymère/copolymère. De plus, la température de fusion d'un copolymère riche en butène-1 comprenant du butène-1 et au moins
- 25 une autre α -oléfine peut de préférence par exemple diminuer lorsque le
- 30

contenu en α -oléfine (par exemple en éthylène et/ou propylène) augmente. Cela permet par exemple de diminuer la température de fusion et/ou d'obtenir une température de fusion par exemple inférieure à 135 ° C tout en conservant les propriétés (et particulièrement la grande
5 souplesse/flexibilité) du polybutène-1.

Un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut de préférence par exemple être un copolymère comprenant deux monomères. Un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut donc par exemple être un copolymère comprenant du butène-1 et de l'éthylène ou du
10 propylène. De préférence un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut être par exemple un copolymère comprenant du butène-1 et de l'éthylène. Cela permet éventuellement d'éviter des altérations des propriétés dues à la présence d'un ou de plusieurs types de monomères supplémentaires.

15 Un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut de préférence par exemple ne comprendre que quelques unités d'un autre monomère. Un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut de préférence par exemple comprendre entre 0,001 % et 10 %, de préférence entre 0,1 % et 9 %, de préférence entre 0,2 % et 8 %, de préférence entre 0,3 % et
20 7 %, de préférence entre 0,4 % et 6 %, de préférence entre 0,5 % et 5,5 %, de préférence entre 0,7 % et 5 %, de préférence entre 0,9 % et 4,5 %, de préférence entre 1 % et 4 % d'un autre monomère, par exemple une autre α -oléfine, comme l'éthylène ou propylène. Cela permet par exemple de diminuer la température de fusion et/ou d'obtenir une
25 température de fusion par exemple inférieure à 135 ° C tout en conservant les propriétés (et particulièrement la grande souplesse/flexibilité) du polybutène-1.

Un polymère à base de butène et riche en butène-1 peut de préférence par exemple ne comprendre en moyenne qu'environ 100, 50, 25, 10 ou 3
30 unités, d'un autre monomère. Cela permet également par exemple de

diminuer la température de fusion et/ou d'obtenir une température de fusion par exemple inférieure à 135 ° C tout en conservant les propriétés (et particulièrement la grande souplesse/flexibilité du polybutène-1).

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention
5 peut comprendre au moins un polymère à base de butène et/ou un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion déterminée par DSC peut être par exemple inférieure à 135 °C, de préférence inférieure à 134 °C, de préférence inférieure à 133 °C, de préférence inférieure à 132 °C, de préférence inférieure à 131 °C, de
10 préférence inférieure à 130 °C, de préférence inférieure à 129,5 °C, de préférence inférieure à 129 °C, de préférence inférieure à 128,5 °C, de préférence inférieure à 128 °C, de préférence inférieure à 127,5 °C, de préférence inférieure à 127 °C, de préférence inférieure à 126,5 °C, de préférence inférieure à 126 °C, de préférence inférieure à 125,5 °C, de
15 préférence inférieure à 125 °C, de préférence inférieure à 124,5 °C, de préférence inférieure à 124 °C, de préférence inférieure à 123,5 °C, de préférence inférieure à 123 °C, de préférence inférieure à 122,5 °C, de préférence inférieure à 122 °C, de préférence inférieure à 121,5 °C, de préférence inférieure à 121 °C, de préférence inférieure à 120,5 °C, de
20 préférence inférieure à 120 °C, de préférence inférieure à 119,5 °C, de préférence inférieure à 119 °C, de préférence inférieure à 118,5 °C, de préférence inférieure à 118 °C, de préférence inférieure à 117,5 °C, de préférence inférieure à 117 °C, de préférence inférieure à 116,5 °C, de préférence inférieure à 116 °C, de préférence inférieure à 115,5 °C, de
25 préférence inférieure à 115 °C, de préférence inférieure à 114,5 °C, de préférence inférieure à 114 °C, de préférence inférieure à 113,5 °C, de préférence inférieure à 113 °C, de préférence inférieure à 112,5 °C, de préférence inférieure à 112 °C, de préférence inférieure à 111,5 °C, de préférence inférieure à 111 °C, de préférence inférieure à 110,5 °C, de
30 préférence inférieure à 110 °C, de préférence inférieure à 107,5 °C ou de préférence inférieure à 105 °C. Les expériences effectuées dans le

cadre de la présente invention ont permis de constater que l'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1 dont la température de fusion est de préférence par exemple inférieure à 135 °C pour obtenir un mélange d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une
5 part et d'un polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part, permet d'améliorer de manière surprenante les propriétés mécaniques des mousses à base de butène et d'éthylène, selon la présente invention, obtenues grâce à ce mélange.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention
10 peut comprendre au moins un polymère à base de butène et/ou un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion déterminée par DSC peut être par exemple supérieure à 60 °C, de préférence supérieure à 70 °C, de préférence supérieure à 75 °C, de préférence supérieure à 80 °C, de préférence supérieure à 85 °C, de
15 préférence supérieure à 90 °C, de préférence supérieure à 95 °C, de préférence supérieure à 100 °C, de préférence supérieure à 105 °C, de préférence supérieure à 106 °C, de préférence supérieure à 106,5 °C, de préférence supérieure à 107 °C, de préférence supérieure à 108 °C, de préférence supérieure à 109 °C, de préférence supérieure à 110° C de
20 préférence supérieure à 111° C, de préférence supérieure à 111,5 °C, de préférence supérieure à 112 °C, de préférence supérieure à 112,5 °C, de préférence supérieure à 113 °C ou de préférence supérieure à 113,5 °C. Cela permet par exemple d'assurer une bonne tenue mécanique des mousses à base de butène et d'éthylène selon la présente invention à
25 plus haute température.

La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut être déterminée par exemple par calorimétrie différentielle à balayage (DSC, differential scanning calorimetry). La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut de préférence être la température de
30 fusion qui correspond au maximum (sommet) d'un pic de fusion détecté

en DSC. La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut également être une plage de température qui correspond à un pic de fusion (début et fin du pic) détecté en DSC. La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut également être une moyenne de la valeur de début et de la valeur de fin d'une plage de température qui correspond à un pic de fusion détecté en DSC (moyenne de la valeur de début et de la valeur de fin du pic).

La température de fusion peut par exemple être mesurée par DSC en chauffant un échantillon dans une capsule scellée jusqu'à 180°C avec une rampe de température de 10°C par minute. Alternativement il est par exemple également possible de procéder à une première chauffe jusqu'à 180°C avec une rampe de température de 10°C par minute, de maintenir la température à 180°C par exemple pendant 5 minutes, de refroidir l'échantillon jusqu'à - 20 °C avec une rampe de température de 10°C par minute, de maintenir l'échantillon à - 20° C pendant par exemple 5 minutes et de procéder ensuite à une seconde chauffe jusqu'à 180 °C avec une rampe de température de 10°C par minute, pour mesurer la température de fusion lors de cette seconde chauffe.

La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut de préférence être la température de fusion de la forme majoritaire de ce polymère ou copolymère. La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut donc de préférence être la température de fusion qui correspond au pic détecté en DSC, dont l'aire sous le pic est la plus grande.

La température de fusion d'un polymère ou d'un copolymère peut de préférence aussi être la température de fusion déterminée pour la forme thermodynamiquement la plus stable de ce polymère ou copolymère. Pour un polymère et/ou un copolymère comportant plusieurs formes polymorphes, comme par exemple le polybutène-1 et/ou un copolymère comprenant du butène-1, la température de fusion du polymère peut être

la température de fusion de la forme thermodynamiquement la plus stable de ce polymère (par exemple la forme I dans le cas du polybutène-1) ou copolymère.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention
5 peut comprendre au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part, de sorte que la différence entre les températures de fusion d'un/du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et d'un/du polymère à base de butène et riche en
10 butène-1 d'autre part peut être par exemple de moins de 40° C, de préférence de moins de 35°C, de préférence de moins de 30°C, de préférence de moins de 25 °C, de préférence de moins de 20 °C, de préférence de moins de 15 °C, de préférence de moins de 10 °C, de préférence de moins de 6 °C, de préférence de moins de 3 °C, de
15 préférence de moins de 2 °C. Lorsque l'on utilise plusieurs polymères à base d'éthylène et riche en éthylène et/ou plusieurs polymères à base de butène et riche en butène-1 la différence entre les températures de fusion pour chaque paire de polymères utilisés peut être par exemple de moins de 40° C, de préférence de moins de 35°C, de préférence de moins de 30°C, de préférence de moins de 25 °C, de préférence de moins de 20 °C, de préférence de moins de 15 °C, de préférence de moins de 10 °C, de préférence de moins de 6 °C, de préférence de moins de 3 °C, de préférence de moins de 2 °C. Les expériences effectuées dans le cadre de la présente invention ont permis de constater que
25 l'utilisation d'un mélange comprenant un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et un polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part, dont les températures de fusion sont proches/semblables, permet d'améliorer encore davantage les propriétés mécaniques des mousses obtenues. Cela peut permettre par exemple
30 d'éviter une trop grande différence au niveau des propriétés et particulièrement par exemple au niveau de la viscosité et/ou de la

cristallinité du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et du polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part lors de la mise en œuvre et/ou du mélange et/ou de l'extrusion et/ou de la comptabilisation et/ou du moussage. Cela peut donc éventuellement par
5 exemple permettre d'améliorer l'homogénéité du mélange de polymères et donc contribuer à faciliter ou à améliorer par exemple la mise en œuvre et/ou le mélange et/ou l'extrusion du mélange de polymères et/ou la comptabilisation et/ou la stabilité de l'interface entre la phase riche en polybutène-1 et la phase riche en polyéthylène et/ou à améliorer les
10 propriétés mécaniques des mousses obtenues.

Une mousse à base de butène et d'éthylène selon la présente invention peut comprendre au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part, de sorte que la différence entre l'indice de
15 fluidité (melt flow index ou melt flow rate) par exemple mesuré à 190 °C avec une masse standard de 2,16 kg (norme ISO 1133) d'un/du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et d'un/du polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part peut être de préférence par exemple de moins 25 g/ 10 min, de préférence de moins
20 24 g/ 10 min, de préférence de moins 23,5 g/ 10 min, de préférence de moins 23 g/ 10 min, de préférence de moins 20 g/ 10 min, de préférence de moins 17,5 g/ 10 min, de préférence de moins 15 g/ 10 min, de préférence de moins 12,5 g/ 10 min, de préférence de moins 10 g/ 10 min, de préférence de moins 7,5 g/ 10 min, de préférence de
25 moins 5 g/ 10 min, de préférence de moins 2,5 g/ 10 min, de préférence de moins 2 g/ 10 min, de préférence de moins 1,5 g/ 10 min, de préférence de moins 1,25 g/ 10 min, de préférence de moins 1,2 g/ 10 min, de préférence de moins 1 g/ 10 min, de préférence de moins 0,8 g/ 10 min, de préférence de moins 0,5 g/ 10 min, de préférence de
30 moins 0,3 g/ 10 min, de préférence de moins 0,2 g/ 10 min. Lorsque l'on utilise plusieurs polymères à base d'éthylène et riche en éthylène

et/ou plusieurs polymères à base de butène et riche en butène-1 la différence entre l'indice de (fluidité melt flow index ou melt flow rate) par exemple mesuré à 190 °C avec une masse standard de 2,16 kg (norme ISO 1133) pour chaque paire de polymères utilisés peut être de

5 préférence par exemple de moins 25 g/ 10 min, de préférence de moins 24 g/ 10 min, de préférence de moins 23,5 g/ 10 min, de préférence de moins 23 g/ 10 min, de préférence de moins 20 g/ 10 min, de préférence de moins 17,5 g/ 10 min, de préférence de moins 15 g/ 10 min, de préférence de moins 12,5 g/ 10 min, de préférence de moins

10 10 g/ 10 min, de préférence de moins 7,5 g/ 10 min, de préférence de moins 5 g/ 10 min, de préférence de moins 2,5 g/ 10 min, de préférence de moins 2 g/ 10 min, de préférence de moins 1,5 g/ 10 min, de préférence de moins 1,25 g/ 10 min, de préférence de moins 1,2 g/ 10 min, de préférence de moins 1 g/ 10 min, de préférence de moins 0,8

15 g/ 10 min, de préférence de moins 0,5 g/ 10 min, de préférence de moins 0,3 g/ 10 min, de préférence de moins 0,2 g/ 10 min. Cela peut encore davantage permettre par exemple d'éviter une trop grande différence au niveau des propriétés et particulièrement par exemple au niveau de la viscosité du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène

20 d'une part et du polymère à base de butène et riche en butène-1 d'autre part, particulièrement à l'état fondu. Cela peut donc éventuellement également contribuer à faciliter ou améliorer par exemple la mise en œuvre et/ou le mélange et/ou l'extrusion et/ou la comptabilisation et/ou la stabilité de l'interface entre la phase riche en polybutène-1 et la phase

25 riche en polyéthylène et/ou à améliorer les propriétés mécaniques des mousses obtenues.

Les mousses selon la présente invention peuvent aussi comprendre au moins un additif (charge). Ces additifs peuvent par exemple comprendre au moins un additif qui améliore les propriétés d'isolation et

30 particulièrement d'isolation thermique, comme par exemple au moins un additif comprenant du noir de carbone, des nanotubes de carbone, des

fullerènes et/ou des flocons (flakes)/particules métalliques, en particulier des flocons d'aluminium. D'autre part, ces additifs peuvent également comprendre au moins additif qui facilite la mise en œuvre et/ou le moussage, comme par exemple au moins un additif comprenant du talc, un mélange de talc et de polyéthylène, un mélange de talc et de LDPE, un ou plusieurs argiles, du dioxyde de titane, du dioxyde de silicium, de l'EVA et/ou un ou plusieurs esters d'acide gras et/ou esters de glycérol, comme par exemple un ou plusieurs stéarate(s), comme par exemple du stéarate de baryum, du stéarate de sodium, du stéarate de glycérol et/ou du glycérol alpha-monostéarate, et/ou un ou plusieurs amides d'acide gras, comme par exemple de la stéaramide ou de la palmitamide, et/ou un au moins un dérivé d'au moins un de ces composés/additifs et/ou un mélange d'au moins deux de ces composés/additifs. De plus, au moins un additif peut aussi comprendre par exemple au moins un stabilisant, au moins un absorbeur d'UV, au moins un plastifiant et/ou au moins un retardateur de flamme et/ou au moins un dérivé d'au moins un de ces composés/additifs et/ou un mélange d'au moins deux de ces composés/additifs.

Les mousses selon la présente invention à base d'éthylène et de butène peuvent par exemple avoir des cellules ouvertes et/ou des cellules fermées. Des cellules ouvertes et/ou des cellules fermées peuvent par exemple être obtenues en fonction des conditions d'extrusion et/ou de moussage. Des cellules ouvertes peuvent par exemple également être obtenues par perforation mécanique de mousses à cellules fermées ou grâce à des conditions de température (température de mise en œuvre lors du moussage assez/plus élevée) permettant l'ouverture au moins partielle des parois cellulaires. La nature des cellules des mousses obtenues peut par exemple influencer leurs propriétés. En effet, des mousses à cellule fermées peuvent par exemple être rigides et/ou moins flexibles/souples et/ou moins compressibles.

Lors de l'utilisation d'un mélange d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et de polybutène-1 (homopolymère de butène-1) d'autre part, on observe une séparation de phase due à l'incompatibilité entre la phase d'éthylène ou riche en polyéthylène et la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1. Par ailleurs, les mousses obtenues dans ce cas ont de mauvaises propriétés mécaniques. En effet, le mélange, qui comporte des nodules/noyaux de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans une phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène, est fragilisé, car l'interface entre les nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 et le polyéthylène ou la phase riche en polyéthylène est fragile. Les fissures se propagent facilement entre et surtout au niveau des interfaces entre les nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 et le polyéthylène ou la phase riche en polyéthylène. L'incompatibilité entre polybutène-1 et polyéthylène mène donc en conséquence à de mauvaises propriétés mécaniques.

Une phase riche en polyéthylène peut par exemple être une phase comprenant par exemple au moins 50 %, de préférence au moins 51 %, de préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 65 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins 75 %, de préférence au moins 80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 %, de préférence au moins 99 %, de préférence au moins 99.5 %, de préférence au moins 99.9 %, de préférence au moins 99.99 %, de préférence au moins 99.999 % en masse, de polyéthylène et/ou d'éthylène. Une phase et/ou un nodule/noyaux riche en polybutène-1 peut vouloir dire par exemple une phase et/ou un nodule/noyaux comprenant par exemple au moins 50 %, de préférence au moins 51 %, de préférence au moins 55 %, de préférence au moins 60 %, de préférence au moins 65 %, de préférence au moins 70 %, de préférence au moins 75 %, de préférence au moins

80 %, de préférence au moins 85 %, de préférence au moins 90 %, de préférence au moins 95 %, de préférence au moins 97 %, de préférence au moins 98 %, de préférence au moins 99 %, de préférence au moins 99.5 %, de préférence au moins 99.9 %, de préférence au moins 99.99 %, de préférence au moins 99.999 % en masse, de polybutène-1 et/ou de butène-1.

De plus, l'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, au lieu de polybutène-1 (homopolymère de butène-1), ne semble pas permettre d'améliorer significativement la dispersion de la phase polybutène-1 ou riche en polybutène-1 dans la phase polyéthylène ou riche en polyéthylène. En effet, l'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, mais comprenant néanmoins une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène (qui pourrait potentiellement jouer un rôle de comptabilisant), n'améliore pas la comptabilisation et la dispersion de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 dans la phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène. La taille des nodules de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 ne change pratiquement pas (ne diminue pas significativement, mais reste similaire, voir figure 1 et 2).

Le taux d' α -oléfine et/ou par exemple d'éthylène d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, ne semble donc pas suffisant pour améliorer la dispersion de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 et/ou pour améliorer la comptabilisation de la phase de polybutène-1 ou riche

en polybutène-1 et de la phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène et/ou pour jouer le rôle de comptabilisant entre les deux phases, particulièrement à l'interface entre celles-ci.

Cependant, l'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, permet néanmoins de manière surprenante d'obtenir des mousses possédant de bonnes propriétés mécaniques. En effet, on ne constate pas de dégradation des mousses en cas de sollicitation mécanique et particulièrement en cas de sollicitations mécaniques répétées. On n'observe pas la formation de fissures/craquelures. Cela peut être dû par exemple à un taux de cristallinité inférieur pour un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement pour un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, qui entraîne un plus faible taux de cristallinité dans les nodules de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 dispersés dans le polyéthylène ou dans une phase riche en polyéthylène. Une plus faible cristallinité des nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans le polyéthylène ou dans une phase riche en polyéthylène peut éventuellement par exemple conduire à une interface plus amorphe et/ou majoritairement amorphe entre les deux phases. Cela peut éventuellement permettre par exemple de favoriser et/ou d'améliorer l'interpénétration des deux phases à l'interface entre celles-ci, de sorte que l'interface entre les deux phases puisse être renforcée.

La présente invention concerne aussi un procédé de moussage pour obtenir des mousses à base d'éthylène et de butène selon la présente invention, dans lequel au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène ainsi qu'au moins un polymère à base de butène et riche en

butène-1, la température de fusion de ce dernier étant inférieure à 135 °C, sont moussés à l'aide d'au moins un agent de moussage.

Dans le procédé de moussage selon l'invention, le moussage et/ou l'extrusion peut/peuvent par exemple être effectué(s) avec température
5 de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion inférieure à 150 °C, de préférence inférieure à 145 °C, de préférence inférieure à 140 °C, de préférence inférieure à 135 °C, de préférence inférieure à 132,5 °C, de préférence inférieure à 130 °C, de préférence inférieure à 127,5 °C, de préférence inférieure à 126 °C, de préférence inférieure à
10 125 °C, de préférence inférieure à 122,5 °C, de préférence inférieure à 120 °C, de préférence inférieure à 117,5 °C, de préférence inférieure à 116 °C, de préférence inférieure à 115 °C, de préférence inférieure à 114,5 °C, de préférence inférieure à 114 °C, de préférence inférieure à 113,5 °C, de préférence inférieure à 113 °C, de préférence inférieure à
15 112,5 °C, de préférence inférieure à 112 °C, de préférence inférieure à 111,5 °C, de préférence inférieure à 111 °C, de préférence inférieure à 110,5 °C, de préférence inférieure à 110 °C, de préférence inférieure à 109,5 °C, de préférence inférieure à 109 °C. La température de mise en œuvre lors du moussage peut de préférence par exemple correspondre à
20 la température en masse en filière maximale lors de l'extrusion et/ou du moussage.

Dans le procédé de moussage selon l'invention, la température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion (qui peut par exemple correspondre à la température en masse en filière maximale) peut par
25 exemple être comprise entre 40 °C et 150 °C, de préférence 50 °C et 140 °C, de préférence entre 90 °C et 130 °C, de préférence entre 100 °C et 120 °C, de préférence entre 102 °C et 117,5°C, de préférence entre 105 °C et 116 °C, de préférence entre 106 °C et 115,5 °C, préférence entre 107 °C et 115 °C, préférence entre 107,5 °C et 114,5 °C,
30 préférence entre 108 °C et 114°C.

Une température trop élevée ou trop faible lors du moussage et/ou de l'extrusion peut par exemple entraîner un moussage incontrôlé et/ou inefficace et/ou inhomogène. Dans ces conditions, il peut même être difficile, voire impossible, d'obtenir par exemple une mousse relativement

5 homogène et/ou une mousse possédant une certaine stabilité dimensionnelle et/ou une mousse possédant des propriétés particulières bien définies. Par ailleurs, il peut par exemple également devenir très difficile dans ces conditions d'obtenir et/ou de faire varier les propriétés désirées. En effet, la température de mise en œuvre lors du moussage

10 et/ou de l'extrusion est par exemple un paramètre important, qui peut permettre de contrôler le moussage. Un contrôle de la température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion permet donc, le cas échéant, d'obtenir des mousses homogènes et/ou des mousses possédant une certaine stabilité dimensionnelle et /ou des mousses

15 possédant des propriétés particulières et bien définies.

Les expériences menées dans le cadre de la présente invention ont permis de déterminer que, dans le procédé de moussage selon l'invention, la température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion (qui peut de préférence par exemple correspondre à la

20 température en masse en filière) peut par exemple correspondre à ou être supérieure à la température de transition vitreuse ou au point de ramollissement ou à la température correspondant au début du pic de fusion (déterminé par DSC) ou de préférence à la température de fusion du polymère à base d'éthylène et/ou du polymère à base de butène et

25 riche en butène-1. Une température peut correspondre par exemple à la température de transition vitreuse ou au point de ramollissement ou à la température correspondant au début du pic de fusion (déterminé par DSC) ou à la température de fusion du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène et/ou du polymère à base de butène et riche en butène-

30 1, si elle est égale à ladite température plus ou moins 50 °C, de préférence plus ou moins 40 °C, de préférence plus ou moins 30 °C, de

préférence plus ou moins 25 °C, de préférence plus ou moins 22,5 °C, de
 préférence plus ou moins 20 °C, de préférence plus ou moins 17,5 °C, de
 préférence plus ou moins 15 °C, de préférence plus ou moins 14 °C, de
 préférence plus ou moins 13 °C, de préférence plus ou moins 12 °C, de
 5 préférence plus ou moins 11 °C, de préférence plus ou moins 10 °C, de
 préférence plus ou moins 9 °C, de préférence plus ou moins 8 °C, de
 préférence plus ou moins 7 °C, de préférence plus ou moins 6 °C de
 préférence plus ou moins 5 °C, de préférence plus ou moins 4 °C, de
 préférence plus ou moins 3 °C, de préférence plus ou moins 2 °C, de
 10 préférence plus ou moins 1 °C, préférence plus ou moins 0,75 °C, de
 préférence plus ou moins 0,5 °C, de préférence plus ou moins 0,1 °C, de
 préférence plus ou moins 0,01 °C ou de préférence plus ou moins
 0,001 °C.

Les expériences menées dans le cadre de la présente invention ont
 15 permis de déterminer que, dans le procédé de moussage selon
 l'invention, la température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de
 l'extrusion (qui peut de préférence par exemple correspondre à la
 température en masse en filière maximale) peut par exemple
 correspondre à plus ou moins 50 °C près, de préférence à plus ou moins
 20 40 °C près, de préférence à plus ou moins 30 °C près, de préférence à
 plus ou moins 25 °C près, de préférence à plus ou moins 22,5 °C près,
 de préférence à plus ou moins 20 °C près, de préférence à plus ou moins
 17,5 °C près, de préférence à plus ou moins 15 °C près, de préférence à
 plus ou moins 14 °C près, de préférence à plus ou moins 13 °C près, de
 25 préférence à plus ou moins 12 °C près, de préférence à plus ou moins
 11 °C près, de préférence à plus ou moins 10 °C près, de préférence à
 plus ou moins 9 °C près, de préférence à plus ou moins 8 °C près, de
 préférence à plus ou moins 7 °C près, de préférence à plus ou moins
 6 °C près, de préférence à plus ou moins 5 °C près, de préférence à plus
 30 ou moins 4 °C près, de préférence à plus ou moins 3 °C près, de
 préférence à plus ou moins 2 °C près ou de préférence à plus ou moins 1

°C près à la température de fusion du polymère à base d'éthylène et/ou du polymère à base de butène et riche en butène-1. Cela permet un bon mélange des polymères et un moussage efficace.

D'autre part, les expériences menées dans le cadre de la présente invention ont également permis de déterminer que, dans le procédé de moussage selon l'invention, la température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion (qui peut de préférence par exemple correspondre à la température en masse en filière) peut par exemple de préférence être inférieure à 150 °C. Cela permet de conserver par exemple un bon contrôle du moussage. En effet, au-delà de cette température un contrôle du moussage semble difficile et le moussage semble inefficace. Les produits obtenus peuvent par exemple avoir tendance à collapser au lieu de former une mousse possédant une bonne stabilité dimensionnelle.

Le (les) agent(s) de moussage utilisé(s) dans le procédé de moussage selon l'invention peut (peuvent) par exemple comprendre au moins un agent de moussage chimique et/ou au moins un agent de moussage physique. Un agent de moussage chimique peut par exemple comprendre au moins un composé ou un mélange de composés, qui peut libérer au moins un gaz (comme par exemple de l'azote ou du CO₂). Un agent de moussage chimique peut par exemple comprendre de l'azodicarbonamide, de l'azodiisobutyronitrile, du benzol-sulfonylhydrazide, du 4,4-oxybenzolsulfonylsemicarbazide, du 4,4-oxybis(benzolsulfonylhydrazid), du diphénylsulfon-3,3-disulfonyl-hydrazide, du p-toluolsulfonylsemicarbazide, de la N,N-diméthyl-N,N-dinitrosotérephtalamide, de la trihydrazinotriazine, de la N=N-Dinitrosopentaméthylèntétramine, de la dinitrosotriméthyltri-amine, de l'hydrogénocarbonate de sodium, du bicarbonate de sodium, du carbonate d'ammonium, du bicarbonate d'ammonium, du carbonate de potassium, du diazobenzène, du diazotoluène, de

l'hydrazodicarbonamide, du diazoisobutyronitrile, du carboxylate de barium, du 5-hydroxytétrazole et/ou au moins un dérivé et/ou un mélange d'au moins deux de ces composés.

Un agent de moussage physique utilisé dans le procédé de moussage selon l'invention peut par exemple comprendre au moins un gaz ou au moins un liquide, qui peut de préférence être volatile. Un agent de moussage physique peut par exemple comprendre du dioxyde de carbone, de l'azote, de l'argon, de l'eau, de l'air, de l'hélium, des hydrocarbures aliphatiques avec 1 à 6 atomes de carbone, des alcools aliphatiques avec 1 à 3 atomes de carbones, des hydrocarbures aliphatiques totalement ou partiellement halogénés avec 1 à 4 atomes de carbone, du méthane, de l'éthane, du propane, du n-butane, de l'isobutane, du n-pentane, de l'isopentane, du néopentane, de l'hexane, de l'isohexane, de l'heptane, de l'octane, du méthylpentane, du diméthylpentane, du butène, du pentène, du 4-méthylpentène, de l'hexène, le 2,2-diméthylbutane, de l'éther de pétrole, du méthanol, de l'éthanol, du n-propanol, de l'isopropanol, des hydrocarbures aliphatiques totalement ou partiellement chlorés et/ou fluorés, du trichlorofluorométhane, du trichlorométhane, du tétrachlorométhane, du chlorofluorométhane, du chlorure de méthyle, du chlorure de méthylène, du chlorure d'éthyle, du chlorure d'éthylène, du 1,1,1-trichloroéthane, du 1,1,1-trifluoroéthane, du diméthyléther et/ou un au moins dérivé d'au moins un de ces composés et/ou un mélange d'au moins deux de ces composés.

Dans le procédé de moussage selon l'invention et pour obtenir des mousses selon l'invention, le moussage peut par exemple avoir lieu à l'aide de moyens mécaniques, comme par exemple un réacteur et/ou un mélangeur et/ou une extrudeuse. De plus, l'agent de moussage peut par exemple être ajouté au polymère riche à base d'éthylène et au polymère à base de butène et riche en butène-1 à l'aide de moyens mécaniques,

comme par exemple un réacteur et/ou un mélangeur et/ou une extrudeuse, dans le procédé de moussage selon l'invention et pour obtenir des mousses selon l'invention. Dans le procédé de moussage selon l'invention et pour obtenir des mousses selon l'invention, le moussage peut donc de préférence par exemple être réalisé par extrusion. Cela peut permettre par exemple un moussage aisé et efficace.

De plus, il est possible d'obtenir soit des mousses à base d'éthylène et de butène selon la présente ayant des cellules ouvertes et/ou des cellules fermées grâce à un procédé de moussage selon l'invention, par exemple en fonction des conditions d'extrusion et/ou de moussage. Des conditions permettant par exemple d'obtenir des mousses à cellules fermées sont données dans les exemples ci-après. Des mousses à cellules ouvertes peuvent néanmoins par exemple être obtenues grâce à des conditions de température (température de mise en œuvre lors du moussage assez/plus élevée) permettant l'ouverture au moins partielle des parois cellulaires. La nature des cellules des mousses obtenues peut par exemple influencer leurs propriétés. En effet, des mousses à cellule fermées peuvent par exemple être rigides et/ou moins flexibles/souples et/ou moins compressibles que des mousses à cellules ouvertes.

Exemples :

1) Dispersion

A- Mélange de polyéthylène et de polybutène-1 réalisé à titre de comparaison

Pour un mélange d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et de polybutène-1 (homopolymère) d'autre part (70% en poids de PEBD/ LDPE, 2601TX17 de SABIC et 30% en poids de

polybutène-1, homopolymère PB 110 de LYONDELLBASELL), on observe une séparation de phase due à l'incompatibilité entre la phase polyéthylène ou riche en éthylène et la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 (voir figure 1).

- 5 La figure 1 est une image d'une coupe du mélange obtenue à l'aide d'un microscope électronique. On constate la présence de petits noyaux/nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans une phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène.

Par ailleurs, les mousses obtenues dans ce cas ont de mauvaises
10 propriétés mécaniques.

En effet, le mélange, qui comporte des nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans une phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène, est fragilisé, car l'interface entre les nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans une phase de
15 polyéthylène ou riche en polyéthylène est fragile.

En cas de sollicitation mécanique et particulièrement en cas de sollicitations mécaniques répétées, on constate une dégradation des mousses et de leurs propriétés, plus particulièrement par exemple la formation de fissures/craquelures.

- 20 Les fissures se propagent facilement entre et surtout au niveau des interfaces entre les nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 et le polyéthylène ou la phase riche en polyéthylène.

L'incompatibilité entre polybutène-1 et polyéthylène mène donc en conséquence à de mauvaises propriétés mécaniques.

25

B- Mélange d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène et polymère à base de butène et riche en butène-1

Pour un mélange d'un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'une part et polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C (comme par exemple un copolymère), d'autre part, on observe également une
5 séparation de phase due à l'incompatibilité entre la phase riche en polyéthylène et la riche phase en polybutène-1 (voir figure 2). Les conditions de mélange sont identiques.

La figure 2 est une image d'une coupe d'un mélange de 70% en poids de PEBD/ LDPE, 2601TX17 de SABIC et de 30% en poids d'un
10 polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, KOATTRO KT AR 05, $T_{fus}=114^{\circ}\text{C}$, de LYONDELLBASELL, obtenue à l'aide d'un microscope électronique (les conditions de mélange sont identiques aux conditions
15 utilisées pour le mélange de polyéthylène et d'un homopolymère de butène-1 décrit ci-dessus). On constate la présence de petits noyaux/nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans une phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène.

L'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou
20 particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, au lieu de polybutène-1 (homopolymère de butène-1), ne semble pas permettre d'améliorer significativement la dispersion de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 dans la phase de polyéthylène ou riche en
25 polyéthylène.

En effet, l'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, mais
30 comprenant néanmoins une autre α -oléfine, comme par exemple de

l'éthylène (qui pourrait potentiellement jouer un rôle de comptabilisant), n'améliore cependant pas la comptabilisation et la dispersion de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 dans la phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène. La taille des nodules de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 ne change pratiquement pas (ne
5 diminue pas significativement, mais reste similaire, voir figure 1 et 2).

Le taux d' α -oléfine et/ou par exemple d'éthylène d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de
10 butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, ne semble donc pas suffisant pour améliorer la dispersion de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 et/ou pour améliorer la comptabilisation de la phase de polybutène-1 ou riche en polybutène-1 et de la phase de polyéthylène ou riche en polyéthylène
15 et/ou pour jouer le rôle de comptabilisant entre les deux phases, particulièrement à l'interface entre celles-ci.

Cependant, l'utilisation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement d'un copolymère de butène-1 et d'une
20 autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, permet néanmoins de manière surprenante d'obtenir des mousses possédant de bonnes propriétés mécaniques.

En effet, on ne constate pas de dégradation des mousses en cas de sollicitation mécanique et particulièrement en cas de sollicitations
25 mécaniques répétées. On n'observe pas la formation de fissures/craquelures.

Cela peut être dû par exemple à un taux de cristallinité inférieur pour un polymère à base de butène et riche en butène-1, dont la température de fusion est par exemple inférieure à 135 °C, et/ou particulièrement pour un

copolymère de butène-1 et d'une autre α -oléfine, comme par exemple de l'éthylène, riche en butène-1, qui entraîne un plus faible taux de cristallinité dans les nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans le polyéthylène ou dans une phase riche en polyéthylène.

- 5 Une plus faible cristallinité des nodules de polybutène-1 ou riches en polybutène-1 dispersés dans le polyéthylène ou dans une phase riche en polyéthylène peut éventuellement par exemple conduire à une interface plus amorphe et/ou majoritairement amorphe entre les deux phases.

- 10 Cela peut éventuellement permettre par exemple de favoriser et/ou d'améliorer l'interpénétration des deux phases à l'interface entre celles-ci, de sorte que l'interface entre les deux phases puisse être renforcée.

2) Mousses à base d'éthylène et de butène selon l'invention et obtention de ces mousses

- 15 Des mousses selon la présente invention ont été préparées avec trois compositions différentes (voir entrées 1, 2 et 3 du tableau 1). De plus, à titre comparatif une mousse de PE-BD/LDPE a également été préparée dans des conditions similaires (voir entrée 4 tableau 1).

Tableau 1

Mélanges	1	2	3	4
PE-BD/LPDE (SABIC, 2601 TX 17, $T_{fus}=113\text{ °C}$, % en masse)	50	75	85	100
Polymère à base de butène et riche en butène-1 (LYONDELLBASELL, KOATTRO KT AR 05, $T_{fus}=114\text{ °C}$, % en masse)	50	25	15	0

20

De plus, chaque mélange (1,2,3 et 4) comprend encore un mélange de plusieurs additifs:

- 3 % en masse (par rapport à la masse des mélanges du tableau)
d'un additif comprenant un mélange d'ester de glycérol (ATMER
122, CRODA, 70 % en masse) et d' EVA (30 % en masse),
 - 3 % en masse (par rapport à la masse des mélanges du tableau)
5 d'un additif comprenant un mélange de 40 % de flocon
d'aluminium dans 60 % de PE-BD/LDPE , et
 - 2 % en masse (par rapport à la masse des mélanges du tableau)
d'un additif comprenant un mélange de 50% en masse de talc
dans 50% en masse de PE-BD/LDPE.
- 10 Les mélanges 1, 2, 3 et 4 sont moussés par extrusion à l'aide
d'isobutane grâce à une extrudeuse et en utilisant les paramètres
indiqués dans le tableau 2.

Tableau 2

Conditions d'extrusion des mélanges	1	2	3	4
Débit extrudeuse (kg/h)	30	30	30	30
Débit gaz (g/min)	59	59	54	54
Pression en filière (bar)	20	20	25	27
T° Masse en filière (°C)	110,7	110,4	109	108,8

- 15 Le moussage et/ou l'extrusion est/sont effectué(s) avec une température
de mise en œuvre de comprise entre 108,8 °C et 110,7 °C. Cette
température est dans ce cas la température en masse en filière. La
température en masse en filière maximale est donc dans tous les cas
inférieure à 150 °C.
- 20 Pour les mousses à base d'éthylène et à base de butène selon la
présente invention (voir entrées 1 à 3 du tableau 1) et pour le procédé
de moussage correspondant, la température de mise en œuvre
correspond par exemple à plus ou moins 5 °C près à la température de
fusion du polymère à base d'éthylène et/ou à la température de fusion du
25 polymère à base de butène et riche en butène-1.

Le moussage est efficace et les mousses ainsi obtenues pour chaque mélange (1,2 et 3) présentent une bonne stabilité dimensionnelle (pas de collapse des mousses lors du moussage, ni par la suite à température ambiante). Les mousses obtenues sont des mousses à cellules fermées.

- 5 De plus, les mousses ainsi obtenues pour chaque mélange (1,2 et 3) présentent de bonnes propriétés mécaniques malgré l'incorporation d'un polymère à base de butène et riche en butène-1.

- 10 En effet, même en cas de sollicitation mécanique et/ou sous la contrainte, on n'observe pas de dégradation des mousses ou de leurs propriétés (voir aussi les résultats des tests de compression ci-après). En particulier, on n'observe pas d'effritement ou de formation de fissures, craquelures, crevasses, ou d'autres signes de dégradation de la mousse, même sous contrainte répétée et/ou en cas de sollicitations mécaniques répétées.

- 15 Les mousses ainsi obtenues pour chaque mélange (1,2,3 et 4) ont été caractérisées en mesurant leur densité et le nombre de cellules par centimètre carré.

Tableau 3

Caractéristiques des mousses	1	2	3	4
Densité (kg/m ³)	26,2	24,1	25,5	25,7
Nombre de cellules/cm ²	700	600	850	850

20

Les mousses obtenues pour chaque mélange (1, 2, 3 et 4) ont également été caractérisées en mesurant leur densité après un traitement thermique à 50 °C permettant un dégazage (voir tableau 4).

Tableau 4

Mousses	1	2	3	4
Densité après dégazage 50°C (kg/m ³)	20,5	21,1	25,4	26,3

On observe que la densité des mousses selon l'invention comprenant un polymère à base de butène et riche en butène-1 (mélange 1,2 et 3) diminue lors du dégazage (voir tableau 4).

De plus, les mousses selon la présente invention obtenues pour chaque mélange (1,2 et 3) possèdent une excellente flexibilité/souplesse (voir tableau 5 et figure 3). La flexibilité/souplesse des mousses obtenues avec les mélanges selon la présente invention (mélanges 1,2 et 3) est plus élevée que celle d'une mousse de polyéthylène (mélange 4). En effet, à compression égale, la flexibilité/souplesse des mousses obtenues avec les mélanges selon la présente invention (mélanges 1,2 et 3) comprenant un polymère à base de butène et riche en butène-1 est plus élevée et la contrainte est donc en conséquence moins importante (voir tableau 5 et figure 3).

On constate par ailleurs que la flexibilité/souplesse des mousses selon la présente invention (mélanges 1,2 et 3) augmente et que les contraintes diminuent en conséquence lorsque le taux d'un polymère à base de butène et riche en butène-1 augmente dans le mélange utilisé pour le moussage (voir tableau 5 et figure 3).

Tableau 5

	Contrainte en N/mm ²			
Mousses	1	2	3	4
% compression				
5	0,005	0,01	0,017	0,02
10	0,01	0,019	0,029	0,037
20	0,023	0,031	0,04	0,048
30	0,037	0,046	0,056	0,063
50	0,085	0,096	0,107	0,114

Les caractéristiques de contrainte-déformation relatives en compression (voir tableau 5 et figure 3) sont déterminées par un test de compression en mesurant la contrainte (en N/mm²) en fonction du taux de compression (en %).

D'autre part, la conductivité thermique des mousses obtenues a également été mesurée (voir tableau 6). La conductivité thermique peut donner une indication sur les propriétés d'isolation thermique des mousses.

Tableau 6

	Valeurs moyennes de lambda			
Mousse	1	2	3	4
Conductivité thermique à 10°C (W/mK)	0,0345	0,0349	0,0358	0,0368
Conductivité thermique à 40°C (W/mK)	0,0379	0,0379	0,0387	0,0397

On constate que la conductivité thermique des mousses selon la présente invention comprenant un polymère à base de butène et riche en butène-1 (mélange 1,2 et 3) est plus faible que celle d'une mousse polyéthylène. Les propriétés d'isolation thermique des mousses selon la présente invention comprenant un polymère à base de butène et riche en butène-1 (mélange 1,2 et 3) sont donc en conséquence meilleures.

De plus, la conductivité thermique diminue lorsque le taux de polymère à base de butène et riche en butène-1 augmente. Les propriétés d'isolation thermique des mousses selon la présente invention sont donc améliorées par l'ajout d'un polymère à base de butène et riche en butène-1
5 (mélange 1,2 et 3).

Des mousses à cellules ouvertes peuvent par exemple être obtenues de manière similaire, mais en utilisant des conditions de température (température de mise en œuvre lors du moussage assez/plus élevée) permettant l'ouverture au moins partielle des parois cellulaires.

Revendications :

1) Mousse à base de butène et d'éthylène, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène ainsi qu'au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, la température de fusion de ce dernier étant inférieure à 135 °C.

2) Mousse à base de butène et d'éthylène selon la revendication 1, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène choisi dans le groupe suivant: du polyéthylène à très basse densité (PE-TBD/ULDPE), du polyéthylène à basse densité linéaire (PE-BDL/LLDPE), du polyéthylène à basse densité (PE-BD/LDPE), du polyéthylène à moyenne densité (PE-MD/MDPE), du polyéthylène à haute densité (PE-HD/HDPE), du polyéthylène à masse molaire très basse (ULMWPE), du polyéthylène à masse molaire élevée (HMWPE).

3) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications 1 ou 2, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène, qui comprend au moins 50 % en masse d'éthylène et/ou dont la température de fusion déterminée par DSC est comprise entre 30 ° C et 160 °C et/ou dont l'indice de fluidité est compris entre 0,1 et 35 g/10 min.

4) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui comprend au moins 50 % en masse de butène-1 et/ou dont l'indice de fluidité est compris entre 0,4 et 0,6 g/10 min.

5) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui comprend

au moins 50 % en masse de butène-1 et/ou dont l'indice de fluidité est compris entre 0,4 et 0,6 g/10 min.

6) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui est un copolymère et/ou un copolymère comprenant du butène-1 et au moins une autre α -oléfine.

7) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1, qui est un copolymère comprenant du butène-1 et de l'éthylène.

8) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1 dont la température de fusion déterminée par DSC est inférieure à 120 °C et/ou est supérieure à 60 °C.

9) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1 et au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène choisis de sorte que la différence entre les températures de fusion déterminées par DSC d'un/du polymère à base de butène et riche en butène-1 d'une part et d'un/du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'autre part soit de moins de 40 °C.

10) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'au moins un polymère à base de butène et riche en butène-1 et au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène choisis de sorte que la différence entre l'indice de fluidité d'un/du polymère à base de butène et riche en

butène-1 d'une part et d'un/du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène d'autre part soit de moins de 25 g/10 min ou de moins de 1 g/10 min.

- 11) Mousse à base de butène et d'éthylène selon l'une des
5 revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un additif choisi parmi :

au moins un additif qui améliore les propriétés d'isolation et particulièrement d'isolation thermique, un additif comprenant du noir de carbone, des nanotubes de carbone, des fullerènes, des flocons
10 (flakes)/particules métalliques, des flocons d'aluminium, au moins un additif qui facilite la mise en œuvre et/ou le moussage, au moins un additif comprenant du talc, un mélange de talc et de polyéthylène, un mélange de talc et de LDPE, une ou plusieurs argiles, du dioxyde de titane, du dioxyde de silicium, de l'EVA et/ou un ou plusieurs esters
15 d'acide gras et/ou un ou plusieurs amides d'acide gras et/ou un ou plusieurs esters de glycérol, un ou plusieurs stéarate(s), du stéarate de barium, du stéarate de sodium, du stéarate de glycérol et/ou du glycérol alpha-monostéarate, au moins un stabilisant, au moins un absorbeur d'UV, au moins un plastifiant et/ou au moins un retardateur de flamme
20 et/ou un au moins un dérivé d'au moins un de ces composés/additifs et/ou un mélange d'au moins deux de ces composés/additifs.

- 12) Procédé de moussage pour obtenir des mousses à base d'éthylène et de butène, caractérisé en ce qu'au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène ainsi qu'au moins un
25 polymère à base de butène et riche en butène-1, la température de fusion de ce dernier étant inférieure à 135 °C, sont moussés à l'aide d'au moins un agent de moussage.

- 13) Procédé de moussage pour obtenir des mousses à base d'éthylène et de butène selon la revendication 12, caractérisé en

ce que le moussage peut être effectué(e) avec une température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion de moins de 150° C.

14) Procédé de moussage pour obtenir des mousses à base d'éthylène et de butène selon l'une des revendications 12 ou 13, caractérisé en ce que le moussage peut être effectué(e) avec une température de mise en œuvre lors du moussage et/ou de l'extrusion qui peut correspondre à ou être supérieure à la température de transition vitreuse ou au point de ramollissement ou à la température correspondant au début du pic de fusion (déterminé par DSC) ou de à la température de fusion du polymère à base d'éthylène et riche en éthylène et/ou du polymère à base de butène et riche en butène-1.

15) Procédé de moussage pour obtenir des mousses à base d'éthylène et de butène selon l'une des revendications 12 à 14, caractérisé en ce que le moussage est effectué à l'aide d'au moins un agent de moussage physique et/ou chimique choisi parmi :

au moins un composé ou un mélange de composés, qui peut libérer au moins un gaz, de l'azodicarbonamide, de l'azodiisobutyronitrile, du benzolsulfonylhydrazide, du 4,4-oxybenzolsulfonylsemicarbazide, du 4,4-oxybis(benzolsulfonylhydrazid), du diphenylsulfon-3,3-disulfonylhydrazide, du p-toluolsulfonylsemicarbazide, de la N,N-diméthyl-N,N-dinitrosotérephtalamide, de la trihydrazinotriazine, de la N=N-Dinitrosopentaméthylentétramine, de la dinitrosotriméthyltriamine, de l'hydrogénocarbonate de sodium, du bicarbonate de sodium, du carbonate d'ammonium, du bicarbonate d'ammonium, du carbonate de potassium, du diazobenzène, du diazotoluène, de l'hydrazodicarbonamide, du diazoisobutyronitrile, du carboxylate de barium, du 5-hydroxytétrazole, au moins un gaz ou au moins un liquide, qui peut de préférence être volatile, du dioxyde de carbone, de l'azote, de l'argon, de l'eau, de l'air, de l'hélium, des hydrocarbures aliphatiques avec 1 à 6 atomes de carbone, des alcools aliphatique avec 1 à 3 atomes

de carbones, des hydrocarbures aliphatiques totalement ou partiellement halogénés avec 1 à 4 atomes de carbone, du méthane, de l'éthane, du propane, du n-butane, de l'isobutane, du n-pentane, de l'isopentane, du néopentane, de l'hexane, de l'isohexane, de l'heptane, de l'octane, du
5 méthylpentane, du diméthylpentane, du butène, du pentène, du 4-méthylpentène, de l'hexène, le 2,2-diméthylbutane, de l'éther de pétrole, du méthanol, de l'éthanol, du n-propanol, de l'isopropanol, des hydrocarbures aliphatiques totalement ou partiellement chlorés et/ou fluorés, du trichlorofluorométhane, du trichlorométhane, du
10 tétrachlorométhane, du chlorofluorométhane, du chlorure de méthyle, du chlorure de méthylène, du chlorure d'éthyle, du chlorure d'éthylène, du 1,1,1-trichloroéthane, du 1,1,1-trifluoroéthane, du diméthyléther et/ou un au moins dérivé d'au moins un de ces composés et/ou un mélange d'au moins deux de ces composés

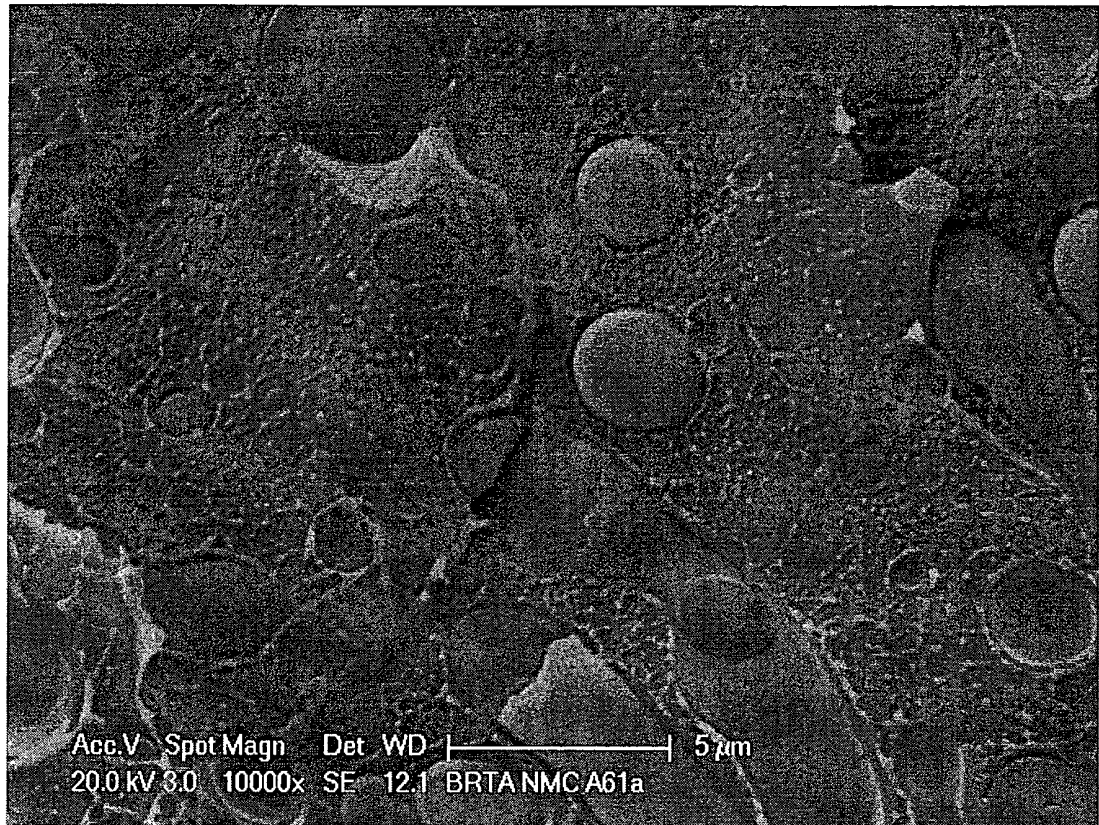


Fig. 1

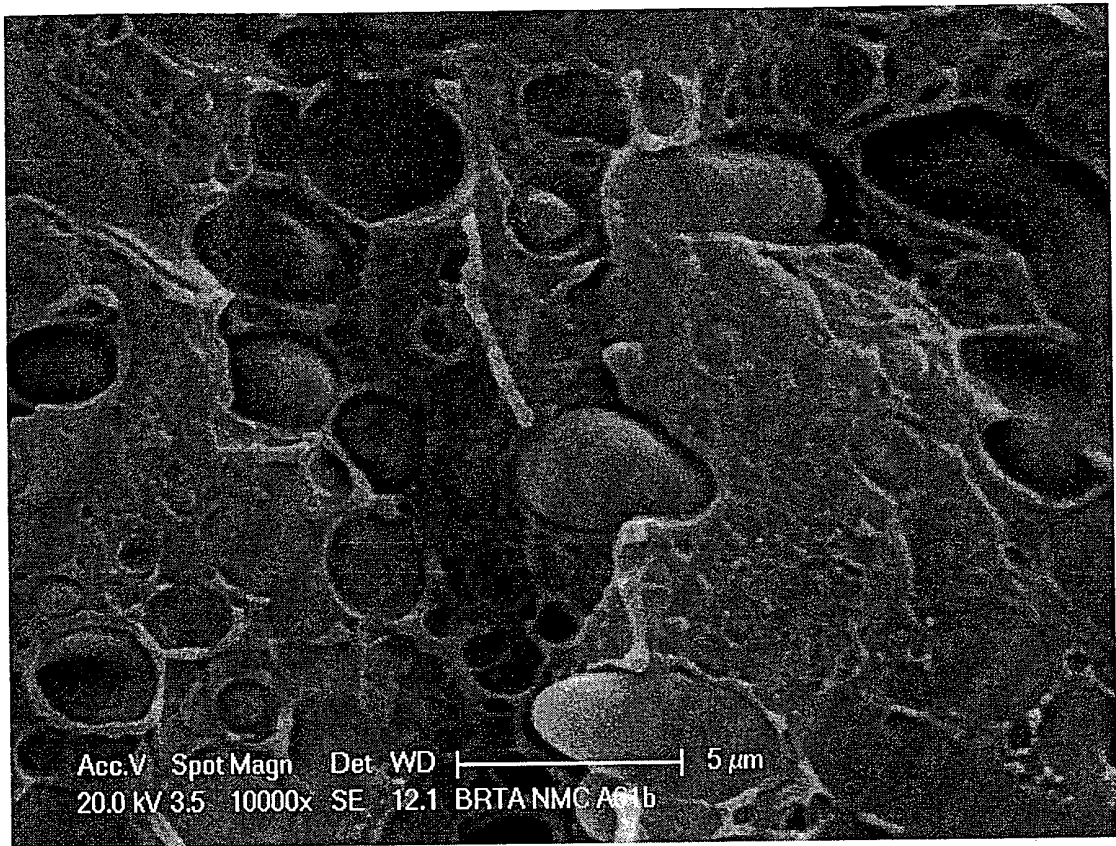


Fig. 2

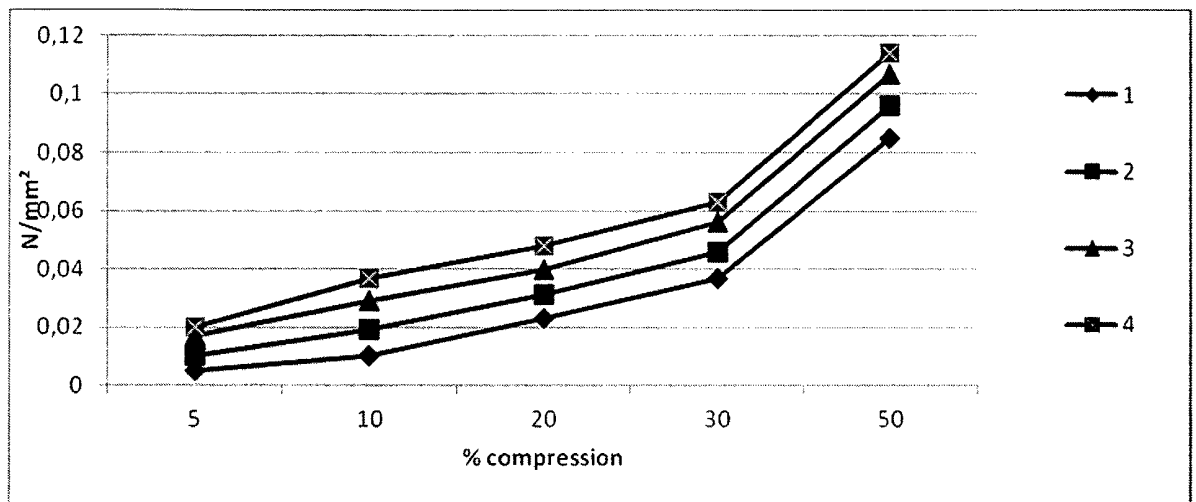


Fig. 3

Mousses à base de butène et d'éthylène**Abrégé**

5 La présente invention concerne des mousses à base de butène et d'éthylène et plus particulièrement des mousses à base de butène-1 et d'éthylène. Des mousses à base de butène et d'éthylène qui comprennent au moins un polymère à base d'éthylène et riche en éthylène ainsi qu'au moins un polymère à base de butène et riche en
10 butène-1, la température de fusion de ce dernier étant inférieure à 135 °C.

Fig. 1

TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL ETABLI EN VERTU DE L'ARTICLE 21 § 9 DE LA LOI BELGE SUR LES BREVETS D'INVENTION DU 28 MARS 1984

IDENTIFICATION DE LA DEMANDE INTERNATIONALE		REFERENCE DU DEPOSANT OU DU MANDATAIRE	
		8052059/BV	
Demande nationale belge n°		Date du dépôt	
201200419		21-06-2012	
		Date de priorité revendiquée	
Déposant (Nom)			
NMC sa			
Date de la requête d'une recherche de type international		Numéro attribué par l'administration chargée de la recherche internationale à la requête d'une recherche de type international	
18-07-2012		SN 58509	
I. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE (en cas de plusieurs symboles de la classification, les indiquer tous)			
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB			
C08J9/00			
II. DOMAINES RECHERCHES			
Documentation minimale consultée			
Système de classification		Symboles de la classification	
IPC 8		C08J C08L	
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents font partie des domaines consultés			
III. ☒ IT A ETE ESTIME QUE CERTAINES REVENDICATIONS NE POUVAIENT FAIRE L'OBJET D'UNE RECHERCHE (Observations sur la feuille supplémentaire)			
IV. ☐ ABSENCE D'UNITE DE L'INVENTION ET/OU CONSTATATION RELATIVE A L'ETENDUE DE LA RECHERCHE (Observations sur la feuille supplémentaire)			

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL

Demande de recherche No

BE 201200419

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE INV. C08J9/00 ADD.				
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB				
B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) C08J C08L				
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) EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data				
C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS				
Catégorie °	Documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées		
	RECHERCHE INCOMPLETE voir feuille supplémentaire C -----			
X	US 4 525 297 A (YAMANE TOSHIHIRO [JP] ET AL) 25 juin 1985 (1985-06-25) * colonnes 5-7; exemples 1-3 * * revendication 1 * -----	1-15		
X	US 4 868 044 A (TANAKA HARUHIKO [JP] ET AL) 19 septembre 1989 (1989-09-19) * exemples 1,3 * * revendication 1 * -----	1-7,9-15		
A	US 2011/198106 A1 (SASAMURA TATSUYA [JP] ET AL) 18 août 2011 (2011-08-18) * exemples; tableaux 2,3 * * revendication 1 * -----	1-15		
☐ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents ☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe				
° Catégories spéciales de documents cités:				
<table border="0"> <tr> <td> "A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt 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, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée </td> <td> "T" document ultérieur publié après la date de dépôt 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 </td> </tr> </table>			"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt 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, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée	"T" document ultérieur publié après la date de dépôt 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
"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt 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, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée	"T" document ultérieur publié après la date de dépôt 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 de type international a été effectivement achevée 26 février 2013		Date d'expédition du rapport de recherche de type international		
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 Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Fonctionnaire autorisé Oudot, René		

**RECHERCHE INCOMPLÈTE
FEUILLE SUPPLÉMENTAIRE C**

Numéro de la demande

SN 58509
BE 201200419

Certaines revendications n'ont pas fait l'objet d'une recherche parce qu'elles se rapportent à des parties de la demande qui ne remplissent pas suffisamment les conditions prescrites pour qu'une recherche significative puisse être effectuée, en particulier:

Revendications susceptibles de faire l'objet de recherches complètes:

Revendications ayant fait l'objet de recherches incomplètes:
1-15

Raison pour la limitation de la recherche:

Les présentes revendications 1 à 15 couvrent un nombre extrêmement important de polymères à base d'éthylène riches en éthylène et de polymères de butène riches en butène-1. Toutes les concentrations en éthylène et respectivement en butène-1 sont envisageables. De même, toutes les proportions relatives du polymère d'éthylène et du polymère de butène sont couvertes par les revendications.

Cependant, il n'est possible de trouver un fondement et un exposé que pour un nombre très limité des polymères revendiqués (Cf. Page 3, lignes 18 à 26; Page 6, lignes 27 à 30; Page 8, lignes 10 à 14).

Une indication des proportions respectives des deux polymères peut être trouvée dans le tableau 1, page 29.

La demande n'est pas conforme aux dispositions de fond au point qu'une recherche significative n'a pu être effectuée au regard de l'ensemble de l'objet des revendications. L'étendue de la recherche a par conséquent été limitée.

La recherche portant sur les revendications 1-15 a été circonscrite comme suit:

- mousses de polymères comprenant au moins 50% en masse d'un polymère d'éthylène riche en éthylène et un polymère de butène riche en butène-1,
- le polymère à base d'éthylène riche en éthylène est choisi parmi VLDPE, LLDPE, LDPE, MDPE, HDPE, ULWMWPE et HMWPE,
- le polymère de butène riche en butène-1 comprend les copolymères de butène-1 avec Z-butène-2, E-butène-2, 2-méthyl propène, éthylène et/ou propylène ayant une température de fusion inférieure à 135°C.

Nb:

- Le composé commercial Koattro KT AR 05 utilisé dans les exemples étant incomplètement défini, il n'est pas été pris en compte dans la définition du polymère de butène.

- La description page 7, ligne 11 et page 9, lignes 17, 18 exclut explicitement les homopolymères de butène-1.

RAPPORT DE RECHERCHE DE TYPE INTERNATIONAL

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande de recherche n

BE 201200419

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 4525297	A	25-06-1985	DE 3368941 D1	12-02-1987
			EP 0105384 A1	18-04-1984
			JP 58179241 A	20-10-1983
			US 4525297 A	25-06-1985
			WO 8303610 A1	27-10-1983

US 4868044	A	19-09-1989	JP 1071742 A	16-03-1989
			JP 7012648 B	15-02-1995
			US 4868044 A	19-09-1989

US 2011198106	A1	18-08-2011	CN 102153799 A	17-08-2011
			JP 2011162721 A	25-08-2011
			US 2011198106 A1	18-08-2011



OPINION ÉCRITE

Dossier N° SN58509	Date du dépôt(jour/mois/année) 21.06.2012	Date de priorité (jour/mois/année)	Demande n° BE201200419
Classification internationale des brevets (CIB) INV. C08J9/00			
Déposant NMC sa			

La présente opinion contient des indications et les pages correspondantes relatives aux points suivants :

- ☒ Cadre n° I Base de l'opinion
- ☐ Cadre n° II Priorité
- ☒ Cadre n° III Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle
- ☐ Cadre n° IV Absence d'unité de l'invention
- ☒ Cadre n° V Déclaration motivée quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration
- ☐ Cadre n° VI Certains documents cités
- ☐ Cadre n° VII Irrégularités dans la demande
- ☒ Cadre n° VIII Observations relatives à la demande

Formulaire BE237A (feuille de titre) (Janvier 2007)	Examineur Oudot, René
---	--------------------------

OPINION ÉCRITE

Demande n°

BE201200419

Cadre n° I Base de l'opinion

1. Cette opinion a été établie sur la base des revendications déposées avant le commencement de la recherche.
2. En ce qui concerne **la ou les séquences de nucléotides ou d'acides aminés** divulguées dans la demande, le cas échéant, cette opinion a été effectuée sur la base des éléments suivants :
 - a. Nature de l'élément:
 - ☐ un listage de la ou des séquences
 - ☐ un ou des tableaux relatifs au listage de la ou des séquences
 - b. Type de support:
 - ☐ sur papier
 - ☐ sous forme électronique
 - c. Moment du dépôt ou de la remise:
 - ☐ contenu(s) dans la demande telle que déposée
 - ☐ déposé(s) avec la demande, sous forme électronique
 - ☐ remis ultérieurement
3. ☐ De plus, lorsque plus d'une version ou d'une copie d'un listage des séquences ou d'un ou plusieurs tableaux y relatifs a été déposée, les déclarations requises selon lesquelles les informations fournies ultérieurement ou au titre de copies supplémentaires sont identiques à celles initialement fournies et ne vont pas au-delà de la divulgation faite dans la demande internationale telle que déposée initialement, selon le cas, ont été remises.
4. Commentaires complémentaires :

OPINION ÉCRITE

Demande n°
BE201200419

Cadre n° III Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle

La question de savoir si l'objet de l'invention revendiquée semble être nouveau, impliquer une activité inventive ou être susceptible d'application industrielle n'a pas été examinée pour ce qui concerne :

- ☐ l'ensemble de la demande
- ☒ les revendications nos 1-15(en partie)

parce que :

- ☐ la demande ou les revendications nos. en question, se rapportent à l'objet suivant, à l'égard duquel l'administration n'est pas tenue d'effectuer une recherche :
- ☐ les revendications, la description, ou les dessins ou les revendications nos. en question ne sont pas clairs, de sorte qu'il n'est pas possible de formuler une opinion valable :
- ☐ les revendications, ou les revendications nos en question, ne se fondent pas de façon adéquate sur la description, de sorte qu'il n'est pas possible de formuler une opinion valable :
- ☒ il n'a pas été établi de rapport de recherche pour toute la demande ou pour les revendications nos 1-15(en partie) en question.
- ☐ une opinion valable n'a pas pu être formulée en l'absence d'un listage, le cas échéant sous format conforme à la norme internationale (OMPI ST.25), des séquences de nucléotides ou d'acides aminés.
- ☐ une opinion valable n'a pas pu être formulée en l'absence des tableaux relatifs au listage des séquences de nucléotides ou d'acides aminés, ou ceux-ci n'étant pas fournis sous forme électronique selon la norme internationale (OMPI ST.25).
- ☐ Voir le cadre supplémentaire pour de plus amples détails.

Cadre n° V Opinion motivée quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration

1. Déclaration

Nouveauté	Oui :	Revendications	8(en partie)
	Non :	Revendications	1-7, 9-15(toutes en partie)
Activité inventive	Oui :	Revendications	
	Non :	Revendications	1-15(en partie)
Possibilité d'application industrielle	Oui :	Revendications	1-15(en partie)
	Non :	Revendications	

2. Citations et explications

voir feuille séparée

OPINION ÉCRITE

Demande n°

BE201200419

Cadre n° VIII Observations relatives à la demande

voir feuille séparée

Point III

Les présentes revendications 1 à 15 couvrent un nombre extrêmement important de polymères à base d'éthylène riches en éthylène et de polymères de butène riches en butène-1. Toutes les concentrations en éthylène et respectivement en butène-1 sont envisageables. De même, toutes les proportions relatives du polymère d'éthylène et du polymère de butène sont couvertes par les revendications.

Cependant, il n'est possible de trouver un fondement et un exposé que pour un nombre très limité des polymères revendiqués (Cf. Page 3, lignes 18 à 26; Page 6, lignes 27 à 30; Page 8, lignes 10 à 14).

Une indication des proportions respectives des deux polymères peut être trouvée dans le tableau 1, page 29.

La demande n'est pas conforme aux dispositions de fond au point qu'une recherche significative n'a pu être effectuée au regard de l'ensemble de l'objet des revendications. L'étendue de la recherche a par conséquent été limitée.

La recherche portant sur les revendications 1-15 a été circonscrite comme suit:

- mousses de polymères comprenant au moins 50% en masse d'un polymère d'éthylène riche en éthylène et un polymère de butène riche en butène-1,
- le polymère à base d'éthylène riche en éthylène est choisi parmi VLDPE, LLDPE, LDPE, MDPE, HDPE, ULWMWPE et HMWPE,
- le polymère de butène riche en butène-1 comprend les copolymères de butène-1 avec Z-butène-2, E-butène-2, 2-méthyl propène, éthylène et/ou propylène ayant une température de fusion inférieure à 135 °C.

Nb:

- Le composé commercial Koattro KT AR 05 utilisé dans les exemples étant incomplètement défini, il n'est pas été pris en compte dans la définition du polymère de butène.
- La description page 7, ligne 11 et page 9, lignes 17, 18 exclut explicitement les homopolymères de butène-1.

Point V

I Nouveauté

Il est fait référence aux documents suivants :

- | | |
|----|---|
| D1 | US 4 525 297 A (YAMANE TOSHIHIRO [JP] ET AL) 25 juin 1985
(1985-06-25) |
| D2 | US 4 868 044 A (TANAKA HARUHIKO [JP] ET AL) 19 septembre 1989
(1989-09-19) |

1) Le document D1 décrit (les références entre parenthèses s'appliquent à ce document) une mousse réticulée comprenant 10 à 90 parts de polyoléfine et 10 à 90 parts d'un copolymère d'éthylène et alpha oléfine (Revendication 1).

Les exemples 1 à 3 décrivent la fabrication de mousses à partir de mélanges de LDPE et de copolymère éthylène/1-butène (Colonnes 5 à 7). La température d'extrusion est de 140°C, ce qui laisse supposer que le point de fusion de chacun des deux constituants du mélange est proche voire inférieur à 135°C.

L'objet de la revendication 1 est décrit dans D1 et n'est donc pas nouveau.

L'objet des revendications 2 à 7 et 11 à 15 est également décrit par D1. Il n'est pas nouveau.

2) Le document D2 décrit une structure multicouche comprenant une mousse de polybutène-1 (Revendication 1).

La mousse décrite dans l'exemple 3 comprend 100 parts d'homopolymère de butène-1, et 20 parts de polyéthylène haute pression (LDPE). Le polyéthylène a un indice de fluidité de 2,5 g/10 minutes et une température de fusion de 117°C. Le polybutène-1 a un indice de fluidité de 0,4 g/10 minutes et une température de fusion de 125°C.

L'objet de la revendication 1 est décrit dans D2 et n'est donc pas nouveau.

L'objet des revendications 2 à 7 et 9 à 15 est également décrit par D2. Il n'est pas nouveau.

3) L'objet de la revendication 8 n'est pas décrit dans les documents de l'art antérieur. Il est nouveau.

II Activité Inventive

Revendication 8

La présente demande ne remplit pas les conditions de brevetabilité, l'objet de la revendication 8 n'impliquant pas d'activité inventive.

Le document D1 est considéré comme étant l'état de la technique le plus proche de l'objet de la revendication 8.

L'objet de la revendication 8 diffère de D1 en ce que le polymère de butène présente une température de fusion inférieure à 120°C et/ou inférieure à 60°C

L'effet technique de l'invention n'a pas été identifié.

Le problème que se propose de résoudre la présente invention peut être formulé comme étant la provision d'une alternative aux mousses polyéthylène/polybutène existantes.

La solution proposée dans la revendication 8 de la présente demande n'est pas considérée comme inventive pour les raisons suivantes:

- Malgré une énumération singulièrement détaillée des températures de fusion souhaitées (Pages 10 et 11), aucun passage de la description ne justifie la fourchette revendiquée, que ce soit en termes de processabilité ou de caractéristiques techniques du produit à obtenir.
 - La description ne fournit aucun exemple comparatif démontrant un effet particulier apporté par la limitation imposée dans la revendication 8.
 - Les températures revendiquées ne représentent que des options que l'homme du métier sélectionnerait, selon le cas, parmi plusieurs possibilités évidentes, afin de résoudre le problème posé, sans faire preuve d'esprit inventif.
- L'objet de la revendication 8 n'est donc pas inventif.

Point VIII Clarté

1) Les termes "riche en éthylène" et "riche en butène-1" employés dans les revendications et tout au long de la description sont vagues et imprécis, et laissent subsister un doute quant à la signification de la caractéristique technique à laquelle ils se rapportent.

Le terme "riche en éthylène" ne permet pas de distinguer un copolymère comprenant 80% d'éthylène et 20% de propylène d'un copolymère comprenant 40% d'éthylène, 30% de propylène et 30% de butène. La même remarque s'applique également au terme "riche en butène-1".

L'objet des revendications n'est donc pas clairement défini.

2) L'utilisation du terme "et/ou" au sein de la revendications 3 sous-entend que le polymère à base d'éthylène et riche en éthylène peut comprendre moins de 50% en masse d'éthylène.

Bien que non-limitatif, l'énoncé des pourcentages préférentiels d'éthylène dans le copolymère d'éthylène de la page 4 (lignes 6 à 20) porte à croire que ce copolymère comprend au moins 50% d'éthylène, rendant caduque l'alternative "et/ou" de la revendication 3.

3) La multiplicité des pourcentages préférentiels d'éthylène au sein du polymère d'éthylène d'une part (Page 4), et des pourcentages préférentiels de butène-1 au sein du polymère de butène d'autre part (Pages 6, 7 et 9) crée un doute quant à l'objet de la protection demandée, au point que les revendications manquent de clarté.

La même objection s'applique également aux températures de fusion préférentielles des deux polymères.

4) L'utilisation du terme "riche en butène-1" pour un copolymère comprenant 25% de butène-1 (Page 6, ligne 10) paraît exagérée.

La même objection s'applique également aux autres pourcentages inférieurs à 50%.

5) Les revendications 4 et 5 sont mot à mot identiques, et donc redondantes

6) L'exemple comparatif (A) correspond aux exigences chimiques de la revendication 1, à savoir un polymère d'éthylène riche en éthylène et du polybutène-1. Le fait que la température de fusion du polybutène-1 utilisé n'est pas mentionnée rend cet exemple inutilisable pour toute comparaison.

7) L'exemple 4 de la série 2 ne contient pas de polymère de butène (Page 29).
Il n'est donc pas conforme à l'invention.

8) La formulation alambiquée de la revendication 10, dans laquelle certains mots semblent manquer, fait que l'objet pour lequel une protection est recherchée n'est pas clairement défini.