

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

⑫

N° 82 11258

⑤④ Compositions de matière plastique extrudée, cellulaire à partir de résine thermoplastique et de caoutchouc pour isolation.

⑤① Classification internationale (Int. Cl. ³). C 08 J 9/14; C 08 L 9/06, 23/00, 25/06, 27/06;
F 16 L 59/00.

②② Date de dépôt..... 28 juin 1982.

③③ ③② ③① Priorité revendiquée :

④① Date de la mise à la disposition du
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 52 du 30-12-1983.

⑦① Déposant : COSDEN TECHNOLOGY INC. — US.

⑦② Invention de : Granville J. Hahn, Walter E. Sommerman et Alonzo H. Searl.

⑦③ Titulaire :

⑦④ Mandataire : R. Baudin,
10, rue de la Pépinière, 75008 Paris.

La présente invention se rapporte à des compositions de matière plastique extrudée, en forme de mousse. Elle concerne aussi leur utilisation comme matériau d'isolation.

5 Il existe actuellement un marché important pour des matériaux isolants légers, flexibles, efficaces et économiques. A cet égard, les compositions de matière plastique, en forme de mousse, ont été appréciées pour la fabrication de produits d'isolation thermique. De plus, de telles
10 compositions sont également très utiles comme matériaux de rembourrage, dans l'emballage, comme isolants acoustiques etc.

Cependant, les techniciens se heurtent à des problèmes pour produire des compositions de matière plastique ,
15 en forme de mousse, possédant une faible densité, une bonne flexibilité ainsi qu'une dimension de cellules petite et uniforme. Par exemple, les compositions en résine plastique, en forme de mousse, pour l'isolation de conduites et qui sont actuellement disponibles sur le marché, sont difficiles
20 à travailler du fait qu'elles manquent de flexibilité. Il existe donc un besoin pour des compositions de matière plastique à faible densité, en forme de mousse, ayant une dimension de cellules petite et uniforme, possédant une bonne flexibilité et résistant au transfert de chaleur.

25 La présente invention a pour objet de telles compositions qui, en ce qui concerne notamment la flexibilité et la résistance au transfert de chaleur, sont supérieures aux compositions commerciales actuelles ou décrites dans la littérature technique. Les compositions de l'invention ont
30 une densité moindre et une dimension de cellules plus petite que les compositions usuelles, tout en nécessitant une quantité d'agent gonflant moindre que celle qui était estimée nécessaire pour obtenir ces produits.

D'après la présente invention, les compositions en
35 matière plastique extrudée, en forme de mousse, comprennent de 2 à 7% en poids environ de caoutchouc, de 0,3 à 10% en poids environ d'agent nucléant, de 0,1 à 1,5% en poids environ de lubrifiant, de 10 à 19% en poids environ d'agent gonflant, le reste étant au moins une résine thermoplastique
40 cristalline ou amorphe.

D'après un mode d'exécution de l'invention, le caoutchouc a une viscosité Mooney comprise entre environ 20 et 55, comme par exemple un copolymère bloc styrène-butadiène et la résine thermoplastique est du polyéthylène à basse densité.

Les résines thermoplastiques pouvant être utilisées dans les compositions de l'invention comprennent, par exemple, le polystyrène, le polychlorure de vinyle, les copolymères acrylonitrile-butadiène-styrène, le polyéthylène, le polypropylène, les polytéréphtalates et similaires. Les résines thermoplastiques sont de préférence sous forme de granules, ce qui permet de les mélanger facilement aux autres composants avant introduction dans l'extrudeuse. Dans les compositions de l'invention, on utilise de préférence du polyéthylène à basse densité. Mais on peut utiliser aussi divers autres copolymères et terpolymères des polymères cristallins et amorphes mentionnés ci-dessus pour fabriquer les compositions de l'invention.

Ces compositions comprennent aussi de 2 à 7% en poids environ de caoutchouc ayant de préférence une viscosité Mooney de l'ordre de 20 à 55 environ. De plus, il est préférable que la viscosité du caoutchouc varie peu dans le différentiel de température rencontré quand le produit extrudé sort de la filière d'extrusion. Comme caoutchouc pouvant être utilisé de façon satisfaisante dans les compositions de l'invention, on peut mentionner, à titre d'exemples, le polybutadiène, polyisoprène, polyisobutylène, copolymère bloc styrène-butadiène, copolymères à teneur élevée en butadiène et similaires. Pour les compositions de l'invention, on utilise avantageusement un copolymère bloc styrène-butadiène facilement disponible. Le caoutchouc est fourni de préférence sous forme de granules ou de particules, dont la dimension est comparable à celle des granules ou particules de résine thermoplastique avec laquelle il est employé. Des compositions contenant moins de 2% en poids environ de caoutchouc ne possèdent pas le degré de flexibilité estimé désirable pour de nombreuses applications, tandis que des compositions contenant plus de 7% en poids environ de caoutchouc peuvent manquer d'homo-

généité pendant l'extrusion, du fait que de petites particules de caoutchouc migrent dans la composition finale.

Ensemble, la résine thermoplastique et le caoutchouc
5 constituent ce qui, dans l'industrie, est désigné par résine de base. Il est évident que cette résine de base peut également contenir des constituants tels qu'agents améliorant les parois des cellules des colorants, des stabilisants aux rayons ultra-violets, etc.

10 D'après un mode avantageux de l'invention, une résine ionomère est mélangée à la résine thermoplastique et au caoutchouc en une quantité allant jusqu'à 3 parties environ pour 100 parties en poids de résine thermoplastique. La résine ionomère permet d'améliorer les parois des cellules dans
15 les compositions, en contribuant à une meilleure élongation de la masse fondue pendant l'extrusion et à de meilleures caractéristiques d'extension et de barrière des parois des cellules du produit fini. On sait aussi qu'en incorporant une petite quantité de résine ionomère, on peut réduire
20 la densité de la composition finale en forme de mousse. D'après un mode d'exécution de l'invention, on peut aussi incorporer, dans les compositions, une petite quantité de noir de carbone, qui agit à la fois comme agent colorant et comme absorbeur de rayons ultra-violets. L'utilisation
25 d'environ 1% en poids de noir de carbone dispersé dans le polyéthylène s'est avérée efficace à cet effet.

Les compositions extrudées de la présente invention comprennent aussi de 3 à 5% en poids environ d'agent nucléant. Des agents nucléants usuels comprennent, par exemple le talc,
30 des métaux en poudre, des pigments et autres matériaux en poudres dont les particules servent de noyaux sur lesquels se condensent les fines gouttelettes d'agent gonflant, quand ce dernier est injecté dans l'extrudeuse. La dimension des particules de l'agent nucléant peut être très faible et,
35 de préférence, ne devrait pas dépasser 43 microns.

Le silicate de magnésium constitue un agent nucléant avantageux pour les compositions de l'invention. De préférence, on mélange l'agent nucléant à la résine thermoplastique et au caoutchouc avant introduction de ces composants dans
40 l'extrudeuse. Il faut noter que d'autres composants en

- 4 -

poudre, par exemple les lubrifiants, retardateurs de flamme éventuels et autres peuvent être présents dans les compositions de l'invention et agir à un certain degré comme agent
5 nucléants pendant l'extrusion.

Les compositions de l'invention contiennent aussi de 0,1 à 1,5 % en poids environ de lubrifiants. On peut employer tout lubrifiant en poudre convenant pour des applications similaires dans l'industrie des matières plasti-
10 ques.

On peut notamment utiliser un mélange d'environ 4 parties en poids de stéarate de calcium par partie d'Acrawax C (une cire synthétique en poudre fabriquée par Glyco Chemicals, Inc. de Greenwich, Connecticut) qui est supposé être de l'éthylène
15 ne N,N'-bis-stéaramide.

Dans certains cas, l'action lubrifiante résultant de l'utilisation de cires synthétiques seules peut être si forte que la fusion cellule-cellule dans le produit fini est entravée. Cependant, on peut remédier à cette tendance en utilisant la cire synthétique en mélange avec un
20 autre lubrifiant en poudre, tel le stéarate de calcium, dans les proportions données ci-dessus.

Les compositions de polyéthylène à basse densité, en forme de mousse, pour l'isolation de conduites, comprennent aussi de 10 à 19% en poids environ, notamment
25 de 12 à 15% en poids environ, d'un agent gonflant . Comme agents gonflants, on peut utiliser le chlorure de méthyle, le dioxyde de carbone, l'ammoniac, l'air, le pentane, l'isopentane, les hydrocarbures fluorés et leurs mélanges.

On utilise avantageusement un mélange comprenant environ 80% en poids de Fréon 114 et 20% en poids de Fréon 11 (Fréon 114 et Fréon 11 sont des marques déposées pour des hydrocarbures fluorés fabriqués par Du Pont de Nemours, E.I., Co., Wilmington, Delaware). L'agent gonflant subit une
30 expansion rapide quand la composition plastique sort de l'extrudeuse, en créant les cellules individuelles qui sont la caractéristique du produit final. En général, une augmentation de la volatilité de l'agent gonflant conduit à une augmentation de la vitesse d'expansion et de la dimension
35 des cellules formées.
40

Cependant, quand la volatilité de l'agent gonflant est trop grande et dépasse la résistance à la traction du matériau comprenant les parois des cellules à la température de sortie, un nombre important de cellules peuvent subir une post-expansion, ce qui affecte défavorablement le produit. Des compositions de résine synthétique, en forme de mousse, préparées à partir d'agents gonflants fortement volatils, ont, en outre, le désavantage de conduire à une contraction des cellules, quand le produit en forme de mousse commence à se refroidir en aval de la filière d'extrusion. Compte-tenu de ces facteurs, on a obtenu des résultats intéressants en utilisant une quantité majeure d'agent gonflant peu volatil ensemble avec une quantité moindre d'agent gonflant plus volatil. A la sortie de la filière d'extrusion, l'agent plus volatil subit une expansion rapide avec augmentation de la dimension des cellules, mais sans rupture de la paroi de ces cellules. Ensuite, quand la composition commence à se refroidir l'agent gonflant moins volatil contribue à éviter la contraction des cellules.

Les compositions nouvelles de l'invention peuvent être fabriquées avec un appareil usuel et des méthodes connues pour la production de mousses en résines synthétiques. Dans ces procédés, classiques, la résine thermoplastique et le caoutchouc, ainsi que l'agent nucléant, le lubrifiant et les autres additifs usuels tels que résine ionomère, agent retardateur de flamme, colorant, stabilisant aux rayons ultra-violets, etc. sont mélangés, introduits dans une trémie, puis amenés à la zone d'alimentation d'une extrudeuse du type à vis en tandem. Quand la composition avance dans l'extrudeuse, les composants subissent un mélange complémentaire et la résine thermoplastique ainsi que le caoutchouc sont soumis à des forces de cisaillement et de compression, d'où échauffement de la composition qui est transformée en une masse s'écoulant de façon pratiquement continue. Quand la composition atteint le fourreau de la première extrudeuse, on injecte l'agent gonflant dans le fourreau sous une forte pression, par exemple 350 kg/cm². Dès qu'il est à l'intérieur du fourreau, l'agent gonflant

- 6 -

est mélangé à la composition thermoplastique et se condense autour des particules d'agent nucléant qu'elle contient.

Cette condensation est favorisée par le fait que les particules d'agent nucléant, qui sont très fines, ne subissent pas de cisaillement par la vis de l'extrudeuse et restent donc plus froides que le métal qui les entoure.

La composition sortant de la première extrudeuse est ensuite amenée à la seconde extrudeuse. Le fourreau de la seconde extrudeuse a une enveloppe avec circulation de fluide de refroidissement afin de réduire la température de la composition.

Les compositions de l'invention ont une densité plus faible, une plus petite dimension de cellules, une meilleure flexibilité et une plus grande résistance au transfert de chaleur que les compositions extrudées, en mousse, connues jusqu'à présent. Par exemple, alors que les densités de ces compositions connues varient d'environ 45 à 110 kg/m³ celles des compositions de présente invention peuvent être aussi faibles que 30 kg/m³ ou même moins. De plus, les densités les plus faibles sont obtenues quand on utilise environ 10 à 19% en poids, et de préférence 12 à 15% en poids d'agent gonflant, alors que les compositions connues jusqu'à présent nécessitent au moins 20 à 25% d'agent gonflant. Du fait du coût élevé de l'agent gonflant par rapport aux autres constituants de l'invention, la réduction importante de la quantité nécessaire de cet agent gonflant représente une économie appréciable. Il faut également ajouter l'amélioration sensible des propriétés de la composition finale.

Il est évident que des modifications et améliorations peuvent être apportées aux compositions décrites ci-dessus, sans sortir du cadre de la présente invention.

Revendications:

1. Composition de matière plastique extrudée, en forme de mousse, caractérisée en ce qu'elle comprend de 2 à 7%
5 en poids environ de caoutchouc, de 0,3 à 10% en poids environ d'agent nucléant, de 0,1 à 1,5% en poids environ d'agent lubrifiant, de 10 à 19% en poids environ d'agent gonflant, le reste étant au moins une résine thermoplastique cristalline ou amorphe.
- 10 2. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le caoutchouc a une viscosité Mooney de l'ordre de 20 à 55.
3. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 et 2, caractérisée en ce que le caoutchouc est un copoly-
15 mère styrène-butadiène, notamment un copolymère bloc styrène-butadiène
4. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisée en ce que la résine thermoplastique est
20 du polystyrène, polychlorure de vinyle, copolymère acrylonitrile-butadiène-styrène, polytéréphtalates, polypropylène ou polyéthylène, notamment du polyéthylène à basse densité.
5. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisée en ce que l'agent nucléant est une poudre dont la dimension des particules ne dépasse pas 43 microns.
- 25 6. Composition selon la revendication 5, caractérisée en ce que l'agent nucléant comprend au moins une petite quantité de silicate de magnésium.
7. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, caractérisée en ce que l'agent nucléant est
30 présent en une quantité de l'ordre de 3 à 5% en poids.
8. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 7, caractérisée en ce que l'agent gonflant est du chlorure de méthyle, du dioxyde de carbone, de l'ammoniac, de l'air, du pentane, de l'isopentane, un hydrocarbure
35 fluoré ou leurs mélanges.
9. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que l'agent gonflant est présent en une quantité de l'ordre de 12 à 15% en poids.
10. Composition selon l'une quelconque des revendications
40 1 à 9, caractérisée en ce qu'elle comprend aussi une résine

ionomère en une quantité ne dépassant pas 3 parties pour 100 parties de résine thermoplastique.

11. Composition de matière plastique extrudée, en forme de mousse, pour l'isolation des conduites, caractérisée en ce qu'elle comprend de 2 à 7% en poids environ et en particulier de 3 à 5% en poids environ de copolymère bloc styrène-butadiène, de 0,3% à 10% en poids environ et en particulier de 3 à 5% en poids environ d'agent nucléant, de 0,1 à 1,5% en poids environ d'agent lubrifiant, de 10 à 19% en poids environ et en particulier de 12 à 15% en poids environ d'agent gonflant, le reste étant du polyéthylène à basse densité
12. Composition selon la revendication 11, caractérisée en ce que la composition extrudée a une densité de l'ordre de 24 à 40 kg/m².
13. Composition selon l'une quelconque des revendications 11 et 12, caractérisée en ce qu'elle contient aussi une résine ionomère en une quantité allant jusque 3 parties pour 100 parties de polyéthylène.