

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
COURBEVOIE

①1 N° de publication : **3 087 777**

(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

②1 N° d'enregistrement national : **18 59974**

⑤1 Int Cl<sup>8</sup> : **C 08 J 3/20** (2019.01), C 08 L 33/06, 33/02, 83/04,  
53/00, C 09 B 67/22, F 21 S 2/00

⑫ **DEMANDE DE BREVET D'INVENTION**

**A1**

②2 **Date de dépôt** : 26.10.18.

③0 **Priorité** :

④3 **Date de mise à la disposition du public de la  
demande** : 01.05.20 Bulletin 20/18.

⑤6 **Liste des documents cités dans le rapport de  
recherche préliminaire** : *Se reporter à la fin du  
présent fascicule*

⑥0 **Références à d'autres documents nationaux  
apparentés** :

**Demande(s) d'extension** :

⑦1 **Demandeur(s)** : ARKEMA FRANCE Société anonyme  
— FR.

⑦2 **Inventeur(s)** : BOUTILLIER JEAN-MARC, ANDRE  
BENOIT et QUERUEL SYLVAIN.

⑦3 **Titulaire(s)** : ARKEMA FRANCE Société anonyme.

⑦4 **Mandataire(s)** : ARKEMA FRANCE Société anonyme.

⑤4 **COMPOSITION DE POLYMERE COMPRENANT DES COLORANTS, SON PROCEDE DE PREPARATION, SON  
UTILISATION ET OBJET COMPRENANT CELLE-CI.**

⑤7 La présente invention concerne une composition de polymère comprenant une phase de polymère élastomère, des particules de polymère et un colorant.

En particulier, la présente invention concerne une composition de polymère comprenant des particules de polymère de phase élastomère et un colorant, sont procédé de préparation et son utilisation.

La présente invention concerne en outre des objets ou des articles comprenant une composition de polymère comprenant une phase de polymère élastomère, des particules de polymère et un colorant.

La présente invention concerne en outre un dispositif d'éclairage ou lumineux comprenant une composition de polymère comprenant une phase de polymère élastomère, des particules de polymère et un colorant.

FR 3 087 777 - A1



**Composition de polymère comprenant des colorants, son procédé de  
préparation, son utilisation et objet comprenant celle-ci**

**[Domaine de l'invention]**

5 [001] La présente invention concerne une composition de polymère comprenant une phase de polymère élastomère, des particules de polymère et un colorant.

[002] En particulier, la présente invention concerne une composition de polymère comprenant des particules de polymère de phase  
10 élastomère et un colorant, son procédé de préparation et son utilisation.

[003] La présente invention concerne en outre des objets ou des articles comprenant une composition de polymère comprenant une phase de polymère élastomère, des particules de polymère et un colorant.

15 [004] La présente invention concerne en outre un dispositif d'éclairage ou lumineux comprenant une composition de polymère comprenant une phase de polymère élastomère, des particules de polymère et un colorant.

20 **[Problème technique]**

[005] Des polymères thermoplastiques, et particulièrement des polymères (méth)acryliques sont largement utilisés, comprenant des applications d'éclairage. Cela est principalement dû à leurs caractéristiques en tant que matériau polymère hautement transparent  
25 ayant une excellente résistance au rayonnement ultraviolet et aux intempéries. Ainsi, des polymères (méth)acryliques sont utilisés, par exemple, dans des lampes, des luminaires, des couvercles d'éclairage, des affichages, des étagères éclairées, des surfaces et des signaux éclairés.

30 [006] Les applications d'éclairage ont différentes exigences concernant les polymères (méth)acryliques ou les compositions à base de polymères (méth)acryliques telles que la transmission de lumière, le pouvoir diffusant. Ces compositions à base de polymères (méth)acryliques comprennent généralement des particules plus ou  
35 moins sphériques, qui sont également des particules polymères ou d'autres particules organiques ou particules inorganiques.

[007] En outre, il est également d'un grand intérêt d'obtenir une composition de polymère avec un bon compromis entre les propriétés de transmission et de diffusion de lumière, le masquage de la source de lumière et que la lumière ou lumière colorée soit transmise et diffusée lorsque la source de lumière est mise sous tension. Ce dernier point est particulièrement important pour les applications d'éclairage dans lesquelles, par exemple, il est nécessaire qu'un signe soit visible pendant la journée lorsque la source de lumière est éteinte ou n'est pas nécessairement mise sous tension ; mais également pendant la nuit, ou dans la semi-obscurité, lorsque la source de lumière est mise sous tension.

[008] Ce compromis est basé sur la quantité correcte ou optimale des particules respectives dans la composition de polymère et de colorants dans la composition de polymère.

[009] Par conséquent, il est important d'obtenir une composition de polymère qui contient des particules de polymère et des colorants qui peuvent être utilisés dans des dispositifs d'éclairage qui comprennent des LED qui peuvent masquer la source de lumière et qu'une lumière ou lumière colorée soit transmise et diffusée lorsque la source de lumière est mise sous tension.

[010] En outre, il est d'un grand intérêt de disposer d'une composition à longue durée de vie ou d'objets qui présentent une résistance élevée aux chocs et possèdent une flexibilité accrue.

[011] L'objectif de la présente invention est de décrire une composition de polymère comprenant des particules de polymère et des colorants adaptée pour des appareils d'éclairage et ayant une résistance aux chocs augmentée.

[012] Un objectif supplémentaire de la présente invention est de fournir une composition de polymère comprenant des particules de polymère et des colorants pour des applications d'éclairage produisant un contraste d'aspect et/ou un contraste de couleur indépendant de la couleur de la source d'éclairage en utilisant la même composition de polymère, tout en ayant une résistance aux chocs satisfaisante.

[013] Un autre objectif de la présente invention est de fournir une composition de polymère comprenant des particules de polymère et

des colorants, la composition étant telle que, lorsqu'elle est utilisée dans une application d'éclairage et la source de lumière est allumée, un dispositif d'éclairage comprenant ladite composition peut transmettre de la lumière sur la plage totale de longueur d'onde de lumière visible, tout en ayant une résistance aux chocs satisfaisante.

[014] Un autre objectif supplémentaire de la présente invention est de fournir un dispositif lumineux comprenant une source de lumière et une composition de polymère comprenant des particules de polymère et des colorants telle que, lorsque la source de lumière est sous tension, celle-ci est masquée et peut transmettre de la lumière sur la plage totale de longueur d'onde de lumière visible, ayant une résistance aux chocs satisfaisante.

#### 15 [CONTEXTE DE L'INVENTION]

##### [Art antérieur]

[015] La diffusion de lumière qui augmente le pouvoir de diffusion relatif et le pouvoir masquant est généralement augmenté par ajout de particules diffusantes à la composition et la résistance aux chocs est augmentée par ajout de modificateurs de résistance aux chocs, généralement par ajout de modificateurs de résistance aux chocs de type noyau-enveloppe.

[016] Le document EP1864274 décrit un dispositif d'éclairage combinant une LED et une plaque de diffusion. Le dispositif lumineux comprend au moins une diode électroluminescente et au moins un couvercle constitué d'une matière plastique transparente dans laquelle des particules qui diffusent la lumière émise par la diode électroluminescente sont dispersées.

[017] Le document EP 1927098 décrit un dispositif d'éclairage combinant une LED blanche et une plaque de diffusion. Le dispositif lumineux comprend au moins une diode électroluminescente blanche et au moins un couvercle constitué d'une matière plastique transparente dans laquelle des particules qui diffusent la lumière émise par la diode électroluminescente sont dispersées.

[018] Le document US 2016/0245954 décrit un matériau de mélange de diffusion optique pour un éclairage à LED. Le mélange de diffusion

comprend un mélange de particules inorganiques et de particules organiques.

[019] Le document WO2004/098857 décrit un procédé de moulage par injection pour la production d'articles moulés diffusant la lumière.

5 Le matériau de moulage comprend une matrice de polyméthacrylate de méthyle et des particules de plastique sphériques ayant une taille de particule de 1 à 24  $\mu\text{m}$ .

[020] L'état de la technique ne décrit pas une composition de polymère à résistance aux chocs modifiée comprenant des particules de polymère et un mélange de colorants simultanément.

#### **[Brève description de l'invention]**

[021] De manière inattendue, il a été découvert en outre qu'une composition de polymère PC1 comprenant une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C, une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>, possède un pouvoir masquant suffisant dans des applications d'éclairage et produit une diffusion de lumière et une résistance aux chocs homogènes.

[022] Il a été observé en outre qu'une composition de polymère PC1 comprenant une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C, une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>, peut être utilisée dans des applications d'éclairage pour obtenir un pouvoir masquant suffisant et une diffusion de lumière et une résistance aux chocs homogènes.

#### **[Description détaillée de l'invention]**

35 [023] Selon un premier aspect, la présente invention concerne une composition de polymère PC1 comprenant :

a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,

b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C,

c) des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, et

d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>,

caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec n > 1 dans la composition PC1.

**[024]** Selon un deuxième aspect, la présente invention concerne un procédé de préparation d'une composition de polymère PC1 comprenant :

a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,

b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C,

c) une particule de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, et

d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>,

caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec n > 1 dans la composition PC1.

**[025]** Selon un troisième aspect, la présente invention concerne un article comprenant une composition de polymère PC1 comprenant :

a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,

b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C,

c) des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, et

d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>,

caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec n > 1 dans la composition PC1.

**[026]** Selon un autre aspect, la présente invention concerne l'utilisation d'une composition de polymère PC1 comprenant :

- 5 a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,
  - b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C,
  - 10 c) des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, et
  - d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>,
- caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec  $n > 1$  dans la composition PC1, pour la préparation d'articles dans des applications d'éclairage.

15

**[027]** Un aspect supplémentaire de la présente invention est un dispositif d'éclairage comprenant une composition de polymère PC1 comprenant :

- 20 a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,
  - b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C,
  - 25 c) des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, et
  - d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>,
- caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec  $n > 1$  dans la composition PC1, dans des applications d'éclairage.

30

**[028]** Le terme « phase de polymère élastomère », dans le présent contexte, désigne l'état thermodynamique du polymère au-dessus de sa température de transition vitreuse.

**[029]** Le terme « (méth)acrylate d'alkyle », dans le présent  
35 contexte, désigne à la fois un acrylate d'alkyle et un méthacrylate d'alkyle.

[030] Le terme « copolymère », dans le présent contexte, signifie que les polymères sont constitués d'au moins deux monomères différents.

5 [031] Le terme « parties », dans le présent contexte, désigne des « parties en poids ».

[032] Le terme « polymère thermoplastique », dans le présent contexte, désigne un polymère qui devient liquide ou devient plus liquide ou moins visqueux lorsqu'il est chauffé et qui peut prendre de nouvelles formes par application de chaleur et de pression.

10 [033] Le terme « PMMA », dans le présent contexte, désigne des homo- et copolymères de méthacrylate de méthyle (MMA), pour le copolymère de MMA le rapport en poids de MMA à l'intérieur du PMMA est d'au moins 50 % en poids.

15 [034] Le terme « mélange maître », dans le présent contexte, désigne une composition qui comprend un additif à une concentration élevée dans un matériau véhicule. L'additif est dispersé dans le matériau véhicule.

20 [035] En spécifiant qu'une plage est de x à y dans la présente invention, cela signifie que les limites supérieure et inférieure de cette plage sont incluses, ce qui est équivalent à au moins x et jusqu'à y.

25 [036] En spécifiant qu'une plage est entre x et y dans la présente invention, cela signifie que les limites supérieure et inférieure de cette plage sont exclues, ce qui est équivalent à plus de x et moins de y.

[037] Le terme « transparent », dans le présent contexte, désigne un matériau polymère qui a un facteur de transmission de lumière élevée d'au moins 80 % selon l'ASTM D1003-13 pour une plaque constituée de ce matériau ayant une épaisseur de 3 mm.

30 [038] La composition de polymère PC1 selon la présente invention comprend a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C, b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, et c) des particules de  
35 polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm et d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>, caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec n > 1

dans la composition PC1. En d'autres termes, au moins deux colorants CA<sub>1</sub> et CA<sub>2</sub> différents sont présents dans la composition de polymère PC1.

5 [039] En ce qui concerne la phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible, lesdites séquences macromoléculaires ont une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, de préférence inférieure à 10 °C, plus préférentiellement inférieure à 0 °C, avantageusement inférieure à -5 °C, et plus avantageusement inférieure à -10 °C.

10 [040] La phase élastomère dans la composition selon la présente invention peut être une phase continue, une phase semi-continue ou une phase discontinue.

[041] Dans un premier mode de réalisation préféré, la séquence 15 macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère fait partie d'un copolymère séquencé avec au moins un bloc ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, de préférence inférieure à 10 °C, plus préférentiellement inférieure à 0 °C, avantageusement inférieure à -5 °C, et plus avantageusement 20 inférieure à -10 °C.

[042] Le copolymère séquencé peut être choisi parmi un copolymère 25 séquencé thermoplastique. De préférence, le copolymère séquencé thermoplastique comprend au moins un bloc qui est un bloc acrylique. Cela signifie qu'au moins 50 % en poids des monomères à l'intérieur de ce bloc sont des monomères de (méth)acrylate d'alkyle, qui ont été polymérisés.

[043] Avantageusement, le copolymère séquencé est amorphe. Plus 30 avantageusement, le copolymère séquencé ne comprend aucun bloc semi-cristallin ou cristallin.

[044] De manière préférée entre toutes, le copolymère séquencé 35 thermoplastique est un copolymère séquencé acrylique thermoplastique. Cela signifie qu'au moins 50 % en poids des monomères à l'intérieur du copolymère séquencé acrylique thermoplastique sont des monomères de (méth)acrylate d'alkyle, qui ont été polymérisés.

[045] Le copolymère séquencé acrylique thermoplastique a une formule générale (A)<sub>n</sub>B dans laquelle :

- n est un entier supérieur ou égal à 1,
- A est : un homo- ou copolymère acrylique ou méthacrylique ayant un Tg supérieur à 50 °C, de préférence supérieur à 80 °C, ou un polystyrène, ou un copolymère acrylique/styrène ou méthacrylique/styrène ; de préférence, A est choisi parmi le méthacrylate de méthyle (MMA), le méthacrylate de phényle, le méthacrylate de benzyle ou le méthacrylate d'isobornyle ; plus préférablement, le bloc A est PMMA ou PMMA modifié par des comonomères acryliques ou méthacryliques ;
- B est un homo- ou copolymère acrylique ou méthacrylique ayant un Tg inférieur à 20 °C, de préférence comprenant des monomères choisis parmi l'acrylate de méthyle, l'acrylate d'éthyle, l'acrylate de butyle (BuA), l'acrylate d'éthylhexyle, le styrène (Sty) ou le méthacrylate de butyle, plus préférablement l'acrylate de butyle (BuA), lesdits monomères représentant au moins 50 % en poids, de préférence 70 % en poids de B.

[046] Avantageusement, le copolymère séquencé est amorphe.

[047] De préférence, dans le bloc A, le monomère est choisi parmi le méthacrylate de méthyle (MMA), le méthacrylate de phényle, le méthacrylate de benzyle, le méthacrylate d'isobornyle, le styrène (Sty) ou l'alpha-méthylstyrène, ou des mélanges de ceux-ci. Plus préférablement, le bloc A est PMMA ou PMMA copolymérisé avec des comonomères acryliques ou méthacryliques ou du polystyrène (PS) ou du polystyrène (PS) modifié par des comonomères styréniques.

[048] De préférence, le bloc B comprend des monomères choisis parmi l'acrylate de méthyle, l'acrylate d'éthyle, l'acrylate de butyle (BuA), l'acrylate d'éthylhexyle ou le méthacrylate de butyle et des mélanges de ceux-ci, plus préférablement l'acrylate de butyle, lesdits monomères comprenant au moins 50 % en poids, de préférence 70 % en poids de bloc B.

[049] En outre, les blocs A et/ou B peuvent comprendre d'autres comonomères acryliques ou méthacryliques comportant différents groupes fonctionnels chimiques connus de l'homme du métier, par exemple des groupes fonctionnels d'acide, amide, amine, hydroxyle,

époxy ou alcoxy. Le bloc A peut incorporer des groupes, tels que l'acide acrylique ou l'acide méthacrylique, afin d'augmenter la stabilité à la température de celui-ci.

5 [050] Des comonomères tels que le styrène peuvent également être incorporés dans le bloc B afin de décaler l'indice de réfraction par rapport au bloc A.

[051] De préférence, ledit copolymère séquencé acrylique thermoplastique a une structure choisie parmi : ABA, AB, A<sub>3</sub>B et A<sub>4</sub>B.

10 [052] Le copolymère séquencé acrylique thermoplastique, par exemple, peut être l'un des copolymères triblocs suivants : pMMA-pBuA-pMMA, p(MMAcoMAA)-pBuA-p(MMAcoMAA), p(MMAcoMAA)-p(BuAcoSty)-p(MMAcoMAA) et p(MMAcoAA)-pBuA-p(MMAcoAA). Dans un premier mode de réalisation préféré, le copolymère séquencé (méth)acrylique MBC est p(MMAcoMAA)-p(BuAcoSty)-p(MMAcoMAA). Dans un deuxième mode de  
15 réalisation préféré, le copolymère séquencé est de type MAM (PMMA-pBuA-PMMA).

[053] Il est connu de l'homme du métier que les polymères de type PMMA peuvent comprendre de faibles quantités de comonomère d'acrylate afin d'améliorer la stabilité à la température de ceux-  
20 ci. Faible signifie moins de 9 % en poids, de préférence moins de 7 % en poids et plus préférablement moins de 6 % en poids du polymère.

[054] Le bloc B représente de 10 % à 85 %, de préférence de 15 % à 80 % du poids total du copolymère séquencé.

25 [055] Le bloc B a une masse molaire moyenne en poids comprise entre 10 000 g/mol et 500 000 g/mol, de préférence entre 20 000 g/mol à 300 000 g/mol. La masse molaire moyenne en poids peut être mesurée par chromatographie d'exclusion (SEC).

30 [056] Les copolymères séquencés participant à la composition de la matrice peuvent être obtenus par polymérisation radicalaire contrôlée (CRP) ou par polymérisation anionique ; le procédé le plus adapté selon le type de copolymère devant être fabriqué sera choisi.

[057] De préférence, ce sera la CRP, en particulier en présence de nitroxydes, pour les copolymères séquencés (méth)acryliques de type  
35 (A)<sub>n</sub>B et la polymérisation radicalaire anionique ou de type nitroxyde, pour les structures de type ABA, telles que le copolymère tribloc MAM. La polymérisation radicalaire contrôlée est décrite

dans le document pour obtenir des copolymères séquencés, c'est-à-dire, la demande de brevet international WO 2003/062293.

5 [058] Dans ce premier mode de réalisation préféré, la phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C peut être le bloc A du copolymère séquencé acrylique thermoplastique comme décrit précédemment ou un autre polymère thermoplastique P1 ou un mélange des deux.

10 [059] Le polymère thermoplastique P1 est choisi parmi le poly(téréphtalate d'éthylène) (PET), le poly(méthacrylate de méthyle) (PMMA), le polycarbonate (PC), le poly(fluorure de vinylidène (PVDF), le poly(éthylène-acétate de vinyle) (PEVA) ou une polyoléfine greffée par polyamide.

[060] De préférence, le polymère thermoplastique P1 est choisi parmi un homo- ou copolymère de méthacrylate de méthyle AP1.

15 [061] Le polymère thermoplastique P1 peut être réticulé ou non.

[062] Dans un deuxième mode de réalisation préféré, la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère fait partie d'un réseau de polymère. Le réseau est réticulé, de préférence dans la partie du réseau qui n'est pas la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère.

20 [063] De préférence, la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère qui fait partie d'un réseau de polymère représente entre 1 % en poids et 30 % en poids du réseau de polymère comprenant la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère et les autres chaînes de polymère et agents de réticulation constituant le réseau.

25 [064] De préférence, la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère, qui fait partie d'un réseau de polymère, est une séquence acrylique thermoplastique. Cela signifie qu'au moins 50 % en poids des monomères à l'intérieur de la séquence acrylique thermoplastique sont des monomères de (méth)acrylate d'alkyle.

30 [065] Les monomères de (méth)acrylate d'alkyle de la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère ayant un Tg inférieur à 20 °C, qui fait partie d'un réseau de polymère, comprennent des monomères choisis parmi l'acrylate de

méthyle, l'acrylate d'éthyle, l'acrylate de butyle (BuA), l'acrylate de 2-éthylhexyle, le styrène ou le méthacrylate de butyle, ou des mélanges de ceux-ci. Plus préférablement, l'acrylate de butyle constituant au moins 50 % en poids, de préférence 70 % en poids  
5 desdits monomères de la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère ayant un Tg inférieur à 20 °C, qui fait partie d'un réseau de polymère.

[066] Dans ce deuxième mode de réalisation préféré, la phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins  
10 50 °C fait également partie du réseau.

[067] S'il est réticulé, le rapport de la réticulation est suffisamment faible, de sorte que la composition selon la présente invention puisse encore être thermoformée.

15 [068] **En ce qui concerne les particules de polymère PP1**, celles-ci ont un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, de préférence un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 90 µm, plus préférablement entre 1 µm et 80 µm, avantageusement entre 1 µm et 70 µm et de manière préférée entre  
20 toutes entre 1 µm et 60 µm.

[069] La particule de polymère PP1 peut également être un mélange de différents types de particules. Il peut s'agir de particules de la même nature chimique ayant un diamètre de particule moyen en poids différent, dans la mesure où elles sont toutes deux dans l'intervalle  
25 entre 1 µm et 100 µm de diamètre de particule moyen en poids. Ou bien elles peuvent être des particules de nature chimique différente ayant un diamètre de particule moyen en poids identique ou différent, dans la mesure où elles sont toutes deux dans l'intervalle entre 1 µm et 100 µm de diamètre de particule moyen en poids.

30 [070] **En ce qui concerne les particules de polymère PP1**, celles-ci peuvent être choisies parmi des particules de silicone, des particules (méth)acryliques, des particules styréniques et des mélanges de celles-ci. Les particules peuvent être réticulées ou  
35 partiellement réticulées. Les particules de polymère PP1 peuvent être des mélanges de différents types de particules.

[071] Dans un mode de réalisation spécifique, les particules de polymère PP1 ont un degré de gonflement limité dans des solvants organiques. Un exemple de solvant organique est l'acétone ou un monomère (méth)acrylique tel que le méthacrylate de méthyle. Le  
5 terme « degré de gonflement », dans le contexte de la présente invention, désigne la capacité d'une particule immergée dans un solvant à changer de volume. Un degré de gonflement égal à 0 % signifie que le diamètre de particule reste inchangé. Un degré de gonflement supérieur à 0 % indique une dilatation de volume de la  
10 particule et un degré de gonflement inférieur à 0 % indique une contraction de volume de la particule. Un degré de gonflement de 100 % signifie que la particule a augmenté son volume d'un facteur de 2, ce qui correspond à une augmentation du diamètre de la particule d'un facteur de  $\sqrt[3]{2}$ . Un degré de gonflement de 50% signifie  
15 que la particule a augmenté son volume d'un facteur de 1,5, ce qui correspond à une augmentation du diamètre de la particule d'un facteur de  $\sqrt[3]{1.5}$ .

[072] Dans la présente invention, le degré de gonflement des particules de polymère PP1 dans l'acétone ou un monomère  
20 (méth)acrylique doit être inférieur à 100 %, de préférence inférieur à 50 % et avantageusement inférieur à 20 %.

[073] **En ce qui concerne la particule de polymère de silicone** en tant que particules de polymère PP1, celle-ci a un diamètre de  
25 particule moyen en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 20  $\mu\text{m}$ . Dans un premier mode de réalisation préféré, les particules de silicone PP1 comprennent des chaînes de polysiloxanes ayant une chaîne de squelette silicone-oxygène.

[074] La particule de polymère de silicone PP1 possède un indice de  
30 réfraction compris entre 1,30 et 1,45, de préférence entre 1,35 et 1,45, avantageusement entre 1,36 et 1,44.

[075] Dans un premier mode de réalisation préféré, le diamètre de  
particule moyen en poids de la particule de polymère de silicone  
35 PP1 est de préférence compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 15  $\mu\text{m}$ , plus préférablement entre 1  $\mu\text{m}$  et 8  $\mu\text{m}$ , encore plus préférablement entre 1  $\mu\text{m}$  et 7  $\mu\text{m}$ , encore plus préférablement entre 1  $\mu\text{m}$  et 6  $\mu\text{m}$ ,

avantageusement entre 1  $\mu\text{m}$  et 5  $\mu\text{m}$  et plus avantageusement entre 1  $\mu\text{m}$  et 4  $\mu\text{m}$ .

[076] La masse volumique apparente d'une poudre de la particule de polymère de silicone PP1 est comprise entre 0,1 g/ml et 0,5 g/ml, de préférence entre 0,15 et 0,47 g/ml.

[077] La particule de polymère de silicone PP1 peut, par exemple, être préparée selon US 2008/124549.

[078] La particule de polymère de silicone peut également être un mélange de deux particules de silicone différentes ou plus PP1a, PP1b..., dans la mesure où toutes les particules de silicone présentent les caractéristiques précédemment mentionnées.

[079] **En ce qui concerne les particules de polymère (méth)acrylique** en tant que particules de polymère PP1, celles-ci ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$ , celles-ci comprennent au moins 50 % en poids de monomères provenant de monomères acryliques et/ou méthacryliques dans les chaînes de polymère de la particule de polymère PP2.

[080] Dans un premier mode de réalisation préféré, la particule de polymère (méth)acrylique PP1 est un homo- ou copolymère de méthacrylate de méthyle (MMA) qui comprend au moins 50 %, de préférence au moins 60 %, avantageusement au moins 65 % et plus avantageusement au moins 70 % en poids de méthacrylate de méthyle.

[081] Le diamètre de particule moyen en poids de la particule de polymère (méth)acrylique PP1 est de préférence compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 90  $\mu\text{m}$ , plus préférablement entre 2  $\mu\text{m}$  et 80  $\mu\text{m}$  et avantageusement entre 2  $\mu\text{m}$  et 60  $\mu\text{m}$ .

[082] De préférence, la particule de polymère (méth)acrylique PP1 est réticulée. Le rapport en poids de l'agent de réticulation dans la particule (méth)acrylique PP1 est inférieur à 10 % en poids. L'agent de réticulation est de préférence choisi parmi un composé organique ayant au moins une fonction acrylique ou méthacrylique et une deuxième double liaison qui peut également être polymérisée.

[083] La particule de polymère (méth)acrylique PP1 possède un indice de réfraction compris entre 1,49 et 1,56, de préférence entre 1,50 et 1,55.

[084] La particule de polymère (méth)acrylique PP1 peut être préparée par polymérisation en suspension.

[085] La particule de polymère (méth)acrylique peut également être un mélange de deux particules (méth)acryliques différentes ou plus, PP1a, PP1b..., dans la mesure où toutes les particules présentent les caractéristiques précédemment mentionnées.

[086] **En ce qui concerne les colorants CA**, ceux-ci peuvent être un pigment ou un colorant ou un mélange de pigments et de colorants. Le pigment peut être un pigment inorganique ou un pigment organique.

[087] Dans un premier mode de réalisation préféré, les colorants CA sont un mélange de pigments et de colorants.

[088] Dans un deuxième mode de réalisation préféré, les colorants CA sont un mélange de colorants.

[089] Dans un troisième mode de réalisation préféré, les colorants CA sont un mélange de pigments.

[090] Les colorants CA sont un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec  $n > 1$ . De préférence, la valeur  $n$  est  $1 < n < 10$  et, plus préférablement,  $1 < n < 9$ . Plus préférablement,  $n$  est un entier naturel.

[091] Les colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> sont choisis de sorte qu'un colorant CA<sub>1</sub> soit rouge ou jaune ou orange ou vert ou bleu ou violet, et que l'autre colorant CA<sub>2</sub> soit rouge ou jaune ou orange ou vert ou bleu ou violet, mais ait une couleur différente du colorant CA<sub>1</sub> ; et qu'il soit encore possible qu'un autre colorant CA<sub>3</sub> soit rouge ou jaune ou orange ou vert ou bleu ou violet, mais ait une couleur différente des colorants CA<sub>1</sub> et CA<sub>2</sub> ; et ainsi de suite, jusqu'au colorant CA<sub>n</sub>.

[092] Le mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> confère, de préférence, une couleur grise. Le mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> présente, de préférence, les valeurs suivantes  $20 < L^* < 80$ ,  $-20 < a^* < 20$ ,  $-20 < b^* < 20$ , plus préférablement  $30 < L^* < 70$ ,  $-10 < a^* < 10$ ,  $-10 < b^* < 10$ , encore plus préférablement  $30 < L^* < 70$ ,  $-5 < a^* < 5$ ,  $-5 < b^* < 5$ .

[093] Les trois valeurs  $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$  sont utilisées pour caractériser la couleur principale dans le système CIELAB.  $L^*$  désigne la luminosité et s'étend de 0 (noir) à 100 (blanc). La valeur  $a^*$  mesure le rouge et le vert de la couleur : les couleurs tendant vers le

vert ont une valeur  $a^*$  négative, tandis que celles tendant vers le rouge ont une valeur  $a^*$  positive. La valeur  $b^*$  mesure le bleu et le jaune de la couleur : les couleurs tendant vers le jaune ont une valeur  $b^*$  positive, tandis que celles tendant vers le bleu ont une valeur  $b^*$  négative. Les valeurs  $L^*$ ,  $a^*$  et  $b^*$  sont mesurées au moyen d'un colorimètre spectral (en particulier selon la norme ASTM E 308).

[094] Le mélange de colorants  $CA_1$  à  $CA_n$  est choisi de sorte que, lorsqu'il est mélangé avec un matériau transparent en tant que, par exemple, le polymère P1 mentionné précédemment, une plaque constituée de matériau transparent avec des colorants absorbe d'une façon homogène sur la totalité du spectre de lumière visible entre 400 nm et 700 nm. Homogène signifie que la variation de la transmission de lumière est faible et varie uniquement dans un intervalle de moins de 30 % de valeur absolue. De préférence, cette variation est inférieure à 25 % et avantageusement inférieure à 20 %. Cela est décrit sur la figure 1, pour l'exemple de polymère (méth)acrylique AP1. La valeur la plus élevée est 19 %, la valeur la plus faible est 9 %, ce qui conduit à une variation de 10 % de la valeur absolue de transmission de lumière.

[095] De préférence, la transmission de lumière est comprise entre 5 % et 40 %, plus préférablement entre 10 % et 30 % dans un intervalle de longueur d'onde de 400 nm à 700 nm pour une plaque de polymère (méth)acrylique AP1 ayant 2 mm d'épaisseur comprenant les colorants  $CA_1$  à  $CA_n$ .

[096] Des colorants pour des polymères sont connus et peuvent être, par exemple, choisis parmi les gammes de produits des entreprises Lanxess, Clariant, Synthesia ou BASF pour les pigments et les colorants. Ils comprennent les colorants MACROLEX® de Lanxess tels que Jaune 6G Gran, Jaune 3G Gran, Jaune G Gran, Jaune E2R Gran, Orange 3G Gran, Orange R Gran, Rouge E2G Gran, Rouge A, Rouge EG Gran, Rouge B, Rouge 5B Gran, Violet, 3R Gran, Violet B Gran, Bleu 3R, Bleu RR Gran, Vert 5B Gran et Vert G. Ils comprennent en outre les colorants Solvaperm® et les colorants polymères Polysynthren® de Clariant tels que Jaune 3G, Jaune 2G, Orange 3G, Rouge 2G, Rouge G, ROUGE PFS, ROUGE BB, Rouge Violet R, Violet RSB, Bleu 2B, Vert,

GSB, Vert G, Jaune GG, Jaune NG, Rouge GFP, Violet G, Bleu R, Bleu RLS, Brun 3RL et Brun R.

[097] Les colorants sont, par exemple, des dérivés de méthane, pyrazolone, quinophtalone, périnone, azo, anthraquinone, coumarine.

[098] Les colorants peuvent être, par exemple :

2,4-dihydro-5-méthyl-2-phényl-4-(phénylazo)-3H-pyrazol-3-one, numéro CAS [4314-14-1] ;

12H-phtalopérin-12-one, numéro CAS [6925-69-5] ;

8,9,10,11-tétrachloro-12H-phtalopérin-12-one, numéro CAS [20749-68-2] ;

3-hydroxy-N-(o-tolyl)-4-[(2,4,5-trichlorophényl)azo]naphtalène-2-carboxamide, numéro CAS [6535-46-2] ;

1,4-diamino-2,3-diphénoxyanthraquinone, numéro CAS [6408-72-6] ;

1-hydroxy-4-(p-tolylamino)anthracène-9,10-dione, numéro CAS [81-48-3] ;

1,4-bis(2,4,6-triméthylanilino)-9,10-anthraquinone, numéro CAS [116-75-6] ;

1,4-bis(p-tolylamino)anthraquinone [128-80-3].

[099] La quantité des colorants  $CA_1$  à  $CA_n$  dans la composition de polymère PC1, est comprise entre 10 ppm en poids et 10 000 ppm en poids par rapport au polymère P1, de préférence entre 20 ppm en poids et 8000 ppm en poids, plus préférablement entre 50 ppm en poids et 5000 ppm en poids. La quantité des colorants respectifs est choisie de sorte que le mélange de colorants  $CA_1$  à  $CA_n$  ait, de préférence, une couleur grise, comme défini précédemment, et que, lorsque le mélange de colorants  $CA_1$  à  $CA_n$  est mélangé avec un matériau transparent tel que le polymère P1, une plaque constituée d'un matériau transparent avec des colorants absorbe de façon homogène sur la totalité du spectre de lumière visible entre 400 nm et 700 nm, également comme défini précédemment.

[0100] La quantité du colorant est choisie en fonction de son intensité de couleur relative (teinture). Cette valeur peut être trouvée dans des brochures commerciales ou des fiches techniques

(selon DIN 53235 et exprimé dans SD1/3 - nuance réduite à la profondeur standard internationale 1/3).

5 [0101] Selon une variante, la composition de polymère PC1 comprend au moins un colorant supplémentaire CB, qui est différent de tous les colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> déjà présents dans la composition de polymère PC1.

10 [0102] **En ce qui concerne les colorants CB**, de la variante de la composition de polymère PC1, ceux-ci peuvent être un pigment ou un colorant ou un mélange de pigments et de colorants. Le pigment peut être un pigment inorganique ou un pigment organique. Le colorant CB peut être choisi parmi les mêmes colorants que les colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>.

15 [0103] La phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, constitue au moins 1 % en poids de la composition, de préférence au moins 2 % en poids, et plus préférablement au moins 5 % en poids, sur la base des trois composés a), b), c) et d).

20 [0104] La composition selon la présente invention peut facultativement comprendre en outre des absorbeurs UV, des stabilisants UV, des inhibiteurs de radicaux.

25 [0105] Dans un premier mode de réalisation préféré, la composition de polymère PC1 selon la présente invention comprenant la phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C, la phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, les particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm et les colorants CA1 à  
30 CA<sub>n</sub>, comme décrite précédemment, est sous la forme d'une plaque, qui peut être simple ou légèrement fléchie ou courbée.

[0106] La plaque comprenant la composition de polymère PC1 de la présente invention a une épaisseur comprise entre 0,5 mm et 500 mm.

35 [0107] Un premier procédé de préparation d'une composition selon le premier mode de réalisation préféré de la présente invention, dans laquelle la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la

phase élastomère fait partie d'un copolymère séquencé, comprend une étape de mélange des composés respectifs.

[0108] Ce premier procédé de préparation de la composition selon la présente invention est le mélange du composant comprenant la phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible avec le colorant fluorescent, la phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C faisant déjà partie du copolymère séquencé.

[0109] **En ce qui concerne le premier procédé** de préparation d'une composition de polymère PC1 selon le premier mode de réalisation préféré de l'invention, celui-ci comprend les étapes de fourniture et de mélange des composants a), b), c) et d).

[0110] Plus particulièrement, dans un procédé de fabrication de la composition de polymère PC1, ladite composition PC1 comprend :

a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,

b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, c) une particule de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm,

d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>, caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec n > 1 dans la composition PC1 ;

ledit procédé comprend les étapes de

i) fourniture de :

a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,

b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C,

c) des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm, et

d) les colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>

ii) mélange des quatre composants a), b), c) et d).

[0111] Facultativement, un autre polymère thermoplastique P1, choisi parmi ceux décrits ci-dessus, peut également être incorporé.

[0112] Facultativement, le colorant CB est ajouté.

5 [0113] Les composants peuvent éventuellement être chauffés, si nécessaire, pendant le mélange.

[0114] Le mélange peut également être obtenu par mélange à sec d'une résine solide comprenant la phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible et une composition comprenant des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen  
10 en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et de colorants CA<sub>1</sub> to CA<sub>n</sub>.

[0115] La composition selon le premier mode de réalisation préféré de la présente invention peut être transformée par moulage par injection, extrusion ou coextrusion pour la préparation de plaques ou de films.

15

[0116] Un deuxième procédé de préparation d'une composition de polymère PC1 selon le deuxième mode de réalisation préféré de la présente invention, dans lequel la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère fait partie d'un réseau  
20 de polymère, comprend les étapes de mélange des particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec au moins un monomère et des séquences macromoléculaires de nature flexible suivi d'une étape de polymérisation.

25 [0117] Un exemple de ce procédé de préparation d'une composition selon la présente invention serait une polymérisation de plaque coulée dans laquelle les particules de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> sont mélangés avec le monomère ou les monomères  
30 et les autres composants avant la polymérisation. Un tel procédé, à l'exception de, est décrit dans la demande de brevet international WO 2012/085487.

[0118] Ledit procédé de fabrication de la composition de polymère PC1 utilise, de préférence, un mélange maître ou une couleur liquide  
35 de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>. Le mélange maître ou la couleur liquide comprend entre 100 ppm en poids et 50 % en poids de colorants.

[0119] Dans un premier mode de réalisation préféré du procédé de préparation d'une composition de polymère PC1, un mélange maître est utilisé.

5 [0120] Dans un deuxième mode de réalisation préféré pour la préparation d'une composition de polymère PC1, une couleur liquide est utilisée. Un exemple de concentrés de couleur liquide est décrit dans le document US2009/0156732.

10 [0121] Comme décrit ci-dessus, ladite composition de polymère peut être avantageusement utilisée dans des dispositifs d'éclairage. Les performances de résistance aux chocs sont obtenues grâce à la phase élastomère de séquences macromoléculaires ayant une nature flexible.

15 [0122] Selon un autre aspect supplémentaire, la présente invention concerne l'utilisation de la composition de polymère PC1 pour fabriquer un objet.

20 [0123] La composition PC1 selon l'invention peut être utilisée pour fabriquer un objet ou un objet ou article moulé ou être utilisée pour faire partie d'un article. De préférence, l'objet ou un objet ou article moulé ou étant utilisé pour faire partie d'un article constitué de la composition selon l'invention a une épaisseur supérieure à 50  $\mu\text{m}$ , plus préférentiellement, supérieure à 100  $\mu\text{m}$  et, encore plus préférentiellement, supérieure à 500  $\mu\text{m}$ .

25 [0124] Des exemples d'objet ou d'articles sont des couvercles ou des plaques pour des dispositifs lumineux.

30 [0125] Dans un mode de réalisation, l'objet moulé est un couvercle pour une source de lumière. Le couvercle a généralement une épaisseur comprise entre 0,001 cm et 15 cm, de préférence entre 0,01 cm et 10 cm, plus préférentiellement entre 0,05 cm et 7 cm, plus préférentiellement entre 0,1 cm et 5 cm et encore plus préférentiellement entre 0,2 cm et 4 cm.

35 [0126] Selon encore un autre aspect supplémentaire, la présente invention concerne une procédé de fabrication d'un dispositif d'éclairage, ledit procédé comprenant les étapes de :

- i) fourniture d'une composition de polymère PC1 selon l'invention
- ii) fabrication d'un couvercle pour le dispositif d'éclairage comprenant la composition de polymère PC1
- 5      iii) combinaison du couvercle avec une source de lumière.

[0127] De plus, selon un autre aspect de la présente invention, la composition obtenue à partir de la composition de polymère PC1 selon l'invention peut être utilisée en tant que couvercle pour une source  
10 de lumière ponctuelle. La source de lumière avec le couvercle forme un dispositif d'éclairage. Le couvercle peut être une structure monocouche, ou peut être une structure multicouche. Le couvercle est séparé de la source de lumière par une distance comprise entre 0,1 cm et 50 cm, de préférence entre 1 et 40 cm, de préférence entre  
15 2 et 20 cm et encore plus préférablement entre 3 et 20 cm.

[0128] Dans un autre mode de réalisation supplémentaire, un dispositif d'éclairage comprend la composition de polymère PC1 selon l'invention.

20 [0129] Le dispositif lumineux ou le dispositif d'éclairage comprend une source de lumière. De préférence, la source de lumière est une LED. La source de lumière peut être une LED blanche ou colorée.

[0130] Pour un dispositif d'éclairage comprenant une composition de polymère PC1 selon le premier mode de réalisation préféré de  
25 composition PC1, la source de lumière peut être blanche ou colorée.

[0131] Pour un dispositif d'éclairage comprenant une composition de polymère PC1 selon le deuxième ou troisième mode de réalisation préféré de composition PC1, la source de lumière est de préférence une source de lumière blanche.

30

[0132] Le dispositif d'éclairage selon l'invention possède différentes applications telles que, par exemple :

- l'éclairage intérieur (éclairage ambiant, lampes de salon, lampes de bureau, etc.) ;
- 35 - l'éclairage extérieur (lampadaires, lampes de parc ou de jardin) ;
- l'éclairage ou les affichages pour appareils ménagers ;

- l'éclairage ou les affichages pour articles électriques et électroniques ;
- les affichages publicitaires ;
- les signaux éclairés (dans ce cas, le couvercle peut avoir particulièrement la forme d'une lettre, d'un nombre, d'un symbole ou d'un autre signe quelconque) ;
- l'éclairage industriel ;
- l'éclairage intérieur automobile (éclairage de signalisation, éclairage ambiant, signaux indicateurs, tableau de bord, affichages intérieurs) ;
- l'éclairage automobile extérieur, par exemple, le dispositif lumineux peut être un phare avant, un feu de jour (DRL), un feu antibrouillard, un phare arrière, un indicateur de direction, un feu stop, un feu de signalisation ou un affichage externe.

15

#### **Procédés d'évaluation**

[0133] Le poids moléculaire moyen en poids du composé polymère peut être mesuré par chromatographie d'exclusion (SEC).

[0134] La température de transition vitreuse (Tg) des polymères est mesurée par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) conformément à la norme ISO 11357-2/2013.

[0135] Les propriétés optiques des polymères sont mesurées selon le procédé suivant : la transmittance optique et le trouble sont mesurés selon la norme ASTM D1003, sur des plaques de 2 mm d'épaisseur pour des échantillons moulés. Un appareil Haze-Gard Plus de BYK-Gardner est utilisé. Le brillant est mesuré selon ASTM D523.

[0136] L'indice de réfraction est mesuré avec un réfractomètre.

[0137] Taille de particule : mesurée par diffraction laser avec un compteur Coulter.

[0138] Les trois valeurs L, a\*, b\* sont mesurées par spectrométrie de couleur par réflexion si la source de lumière est éteinte et par transmission si la source de lumière est allumée. Un spectromètre de couleur « Color Sphere » de BYK-Gardner est utilisé.

35

## Revendications

1. Composition de polymère PC1 comprenant
  - a) une phase de polymère ayant une température de transition vitreuse d'au moins 50 °C,
  - b) une phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, et
  - c) une particule de polymère PP1 ayant un diamètre de particule moyen en poids compris entre 1 µm et 100 µm,
  - d) des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub>, caractérisée en ce que le colorant est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec n > 1 dans la composition PC1.
  
2. Composition de polymère PC1 selon la revendication 1, caractérisée en ce que ladite phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible formant la phase élastomère fait partie d'un copolymère séquencé avec au moins un bloc ayant une température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, de préférence inférieure à 10 °C, plus préférablement inférieure à 0 °C, avantageusement inférieure à -5 °C, et plus avantageusement inférieure à -10 °C.
  
3. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 et 2, caractérisée en ce que ladite phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible est choisie parmi un copolymère séquencé thermoplastique, ledit copolymère séquencé thermoplastique comprenant au moins un bloc qui est un bloc acrylique.
  
4. Composition de polymère PC1 selon la revendication 3, caractérisée en ce que ledit copolymère séquencé acrylique a une formule générale (A)<sub>n</sub>B dans laquelle :
  - n est un entier supérieur ou égal à 1,
  - A est : un homo- ou copolymère acrylique ou méthacrylique ayant un Tg supérieur à 50 °C, de préférence supérieur à 80 °C, ou un polystyrène, ou un copolymère

acrylique/styrène ou méthacrylique/styrène ; de préférence, A est choisi parmi le méthacrylate de méthyle (MMA), le méthacrylate de phényle, le méthacrylate de benzyle le méthacrylate d'isobornyle ; plus  
5 préférablement, le bloc A est PMMA ou PMMA modifié par des comonomères acryliques ou méthacryliques ;

- B est un homo- ou copolymère acrylique ou méthacrylique ayant un Tg inférieur à 20 °C, de préférence comprenant des monomères choisis parmi l'acrylate de méthyle,  
10 l'acrylate d'éthyle, l'acrylate de butyle (BuA), l'acrylate d'éthylhexyle ou le méthacrylate de butyle, plus préférablement l'acrylate de butyle (BuA), lesdits monomères représentant au moins 50 % en poids, de préférence 70 % en poids de B.

15

5. Composition de polymère PC1 selon la revendication 1, caractérisée en ce que ladite phase élastomère de séquences macromoléculaires est formée de blocs qui font partie d'un réseau de polymère.

20

6. Composition de polymère PC1 selon la revendication 5, caractérisée en ce que la séquence macromoléculaire de nature flexible formant la phase élastomère qui fait partie d'un réseau de polymère représente entre 1 % en poids et 30 % en poids du  
25 réseau de polymère.

25

7. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, caractérisée en ce que la phase élastomère de séquences macromoléculaires de nature flexible ayant une  
30 température de transition vitreuse inférieure à 20 °C, constitue au moins 1 % en poids de la composition, de préférence au moins 2 % en poids et plus préférablement au moins 5 % en poids sur la base des trois composés a), b) et c).

30

35 8. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 4 à 7, caractérisée en ce que le bloc B des séquences macromoléculaires de ladite phase élastomère a un

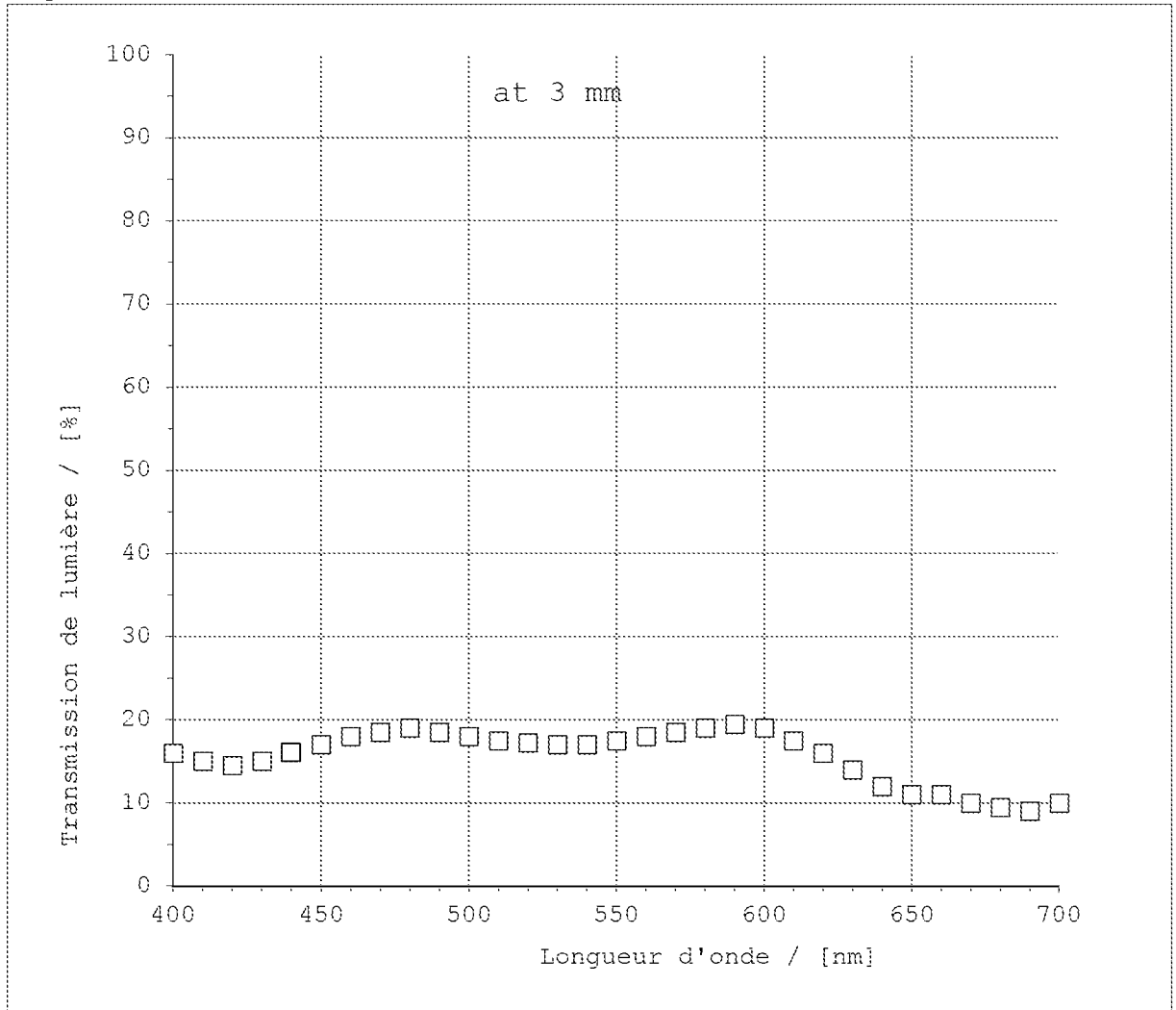
poids moléculaire moyen en poids compris entre 10 000 g/mol et 500 000 g/mol.

- 5 9. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que le mélange de colorants a une couleur grise.
- 10 10. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que le mélange de colorants présente les valeurs suivantes  $20 < L^* < 80$ ,  $-20 < a^* < 20$ ,  $-20 < b^* < 20$ , plus préférablement  $30 < L^* < 70$ ,  $-10 < a^* < 10$ ,  $-10 < b^* < 10$ , encore plus préférablement  $30 < L^* < 70$ ,  $-5 < a^* < 5$ ,  $-5 < b^* < 5$  dans le système CIELAB.
- 15 11. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que des colorants est un mélange de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> avec la valeur n est  $1 < n < 10$ .
- 20 12. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que les colorants sont choisi parmi des dérivés de méthane, pyrazolone, quinophtalone, périnone, azo, anthraquinone et coumarine.
- 25 13. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 12, caractérisée en ce que la quantité des colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> dans la composition de polymère PC1, est comprise entre 10 ppm en poids et 10 000 ppm en poids.
- 30 14. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 13, caractérisée en ce que la particule de polymère PP1 est choisie parmi des particules de silicone, des particules (méth)acryliques, des particules styréniques et des mélanges de celles-ci.
- 35 15. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 14, caractérisée en ce que la particule de polymère PP1 a un degré de gonflement dans le monomère (méth)acrylique inférieur à 100 %, de préférence inférieur à 50 % et avantageusement inférieur à 20 %.

16. Composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 15, caractérisée en ce que la composition de polymère PC1 comprend au moins un colorant supplémentaire CB,  
5 qui est différent de tous les colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> déjà présents dans la composition de polymère PC1.
17. Procédé de préparation d'une composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 16, comprenant une étape  
10 de mélange des composés a), b), c) et d).
18. Procédé de préparation de la composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 16 comprenant les étapes de  
15 i) mélange des composants c) et d) avec les monomères ou une partie des monomères, qui forment a) et/ou b) et  
ii) polymérisation des monomères de l'étape i).
19. Procédé selon la revendication 17 ou 18, caractérisé en ce qu'un  
20 mélange maître ou une couleur liquide de colorants CA<sub>1</sub> à CA<sub>n</sub> est utilisé.
20. Procédé de fabrication d'un dispositif d'éclairage, ledit procédé comprenant les étapes de :  
25 i) fourniture d'une composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 16  
ii) fabrication d'un couvercle pour le dispositif d'éclairage comprenant la composition de polymère PC1  
iii) combinaison du couvercle avec une source de lumière.  
30
21. Utilisation d'une composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 16 dans des applications d'éclairage ou dans un dispositif d'éclairage.
- 35 22. Utilisation d'une composition de polymère PC1 selon l'une quelconque des revendications 1 à 16 pour fabriquer un objet.

23. Utilisation selon la revendication 22, caractérisé en ce que l'objet est un couvercle ou une plaque pour un dispositif lumineux.

Figure 1



**RAPPORT DE RECHERCHE  
 PRÉLIMINAIRE**

 établi sur la base des dernières revendications  
 déposées avant le commencement de la recherche

 N° d'enregistrement  
 national

 FA 860580  
 FR 1859974

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X	WO 2018/151030 A1 (KURARAY CO [JP]) 23 août 2018 (2018-08-23) * revendications; exemples; tableau 2 * -----	1-19,22	C08J3/20 C08L33/06 C08L33/02 C08L83/04
X,D	WO 2006/100127 A2 (ARKEMA FRANCE [FR]) 28 septembre 2006 (2006-09-28) * page 7, lines 20-30 page 23, lines 12-24; revendications * -----	1,20-23	C08L53/00 C09B67/22 F21S2/00
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC)
			C09K H05B C08J F21V G02B
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
3 juillet 2019		Degrendel, Magali	
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS		T : théorie ou principe à la base de l'invention	
X : particulièrement pertinent à lui seul		E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure	
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie		à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure.	
A : arrière-plan technologique		D : cité dans la demande	
O : divulgation non-écrite		L : cité pour d'autres raisons	
P : document intercalaire		.....	
		& : membre de la même famille, document correspondant	

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE  
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 1859974 FA 860580**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.

Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du **03-07-2019**

Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
WO 2018151030 A1	23-08-2018	TW 201840697 A WO 2018151030 A1	16-11-2018 23-08-2018
-----			
WO 2006100127 A2	28-09-2006	EP 1927098 A2 PL 1927098 T3 WO 2006100127 A2	04-06-2008 31-10-2018 28-09-2006
-----			