

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

②

N° 80 27500

⑤④ Compositions de polyorganosiloxanes durcissables sous l'action d'un rayonnement.

⑤① Classification internationale (Int. Cl.³). C 08 L 83/04 // C 09 D 3/82.

②② Date de dépôt..... 24 décembre 1980.

③③ ③② ③① Priorité revendiquée : *EUA, 26 décembre 1979, n° 107.399.*

④① Date de la mise à la disposition du
public de la demande B.O.P.I. — « Listes » n° 27 du 3-7-1981.

⑦① Déposant : GENERAL ELECTRIC COMPANY, résidant aux EUA.

⑦② Invention de : James Vincent Crivello.

⑦③ Titulaire : *Idem* ⑦①

⑦④ Mandataire : Alain Catherine, Getsco,
42, av. Montaigne, 75008 Paris.

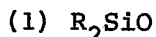
Antérieurement à la présente invention, les compositions de polyorganosiloxane vulcanisables à température ambiante, comme celle décrites dans le brevet des Etats-Unis d'Amérique n° 3 070 555 reposaient sur le durcissement en présence d'humidité d'un mélange d'un polydiorganosiloxane à terminaisons silanol et d'un acyloxysilane. Bien que l'on ait trouvé que l'on pouvait utiliser ces polyorganosiloxanes durcissables en présence d'humidité pour diverses applications, ils libèrent pendant le durcissement, de l'acide acétique qui dégage une odeur désagréable, et réagit défavorablement avec divers substrats. On a obtenu de meilleurs résultats lorsqu'on a découvert, conformément au brevet des Etats Unis d'Amérique n° 3 816 282, que l'on pouvait faire durcir des polyorganosiloxanes sous l'action d'un rayonnement en utilisant un polymercaptosiloxane et une source de radicaux libres. On a trouvé que l'on pouvait utiliser comme catalyseurs des sels d'onium d'éléments des groupes Vb, VIb et VIIb pour la condensation de silanes hydrolysables sous l'influence de la lumière ultraviolette, comme l'indique le brevet des Etats Unis d'Amérique n° 4 101 513.

La présente invention se base sur la découverte que l'on peut obtenir des compositions de polyorganosiloxane durcissables sous l'action d'un rayonnement qui ne dégagent pas d'odeur d'acide acétique et qui sont durcissables à la fois sous l'action des rayons U.V. ou de la lumière visible, en utilisant un mélange d'un polydiorganosiloxane à terminaisons silanol et d'un alcoxysilane en combinaison avec un sel d'onium d'un élément du groupe Vb, VIb ou VIIb. Contrairement aux compositions du brevet des Etats Unis d'Amérique n° 3 816 282, les compositions de polyorganosiloxane durcissables sous l'action d'un rayonnement de la présente invention sont basées sur la condensation des groupes silanols. Dans le cas où on souhaite un durcissement sous l'action de la lumière visible, on peut utiliser un colorant organique activant approprié en combinaison avec les sels d'onium indiqués précédemment.

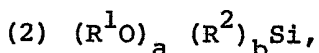
La présente invention met au point des compositions de

polyorganosiloxane durcissables sous l'action d'un rayonnement qui comprennent :

(A) 100 parties d'un polyorganosiloxane à terminaisons silanol constitué essentiellement de motifs diorganosiloxy chimiquement combinés répondant à la formule :



(B) de 2 à 100 parties d'un alcoxysilane répondant à la formule :



(C) de 0,1 à 20 parties d'un sel d'onium d'un élément du groupe Vb, du groupe VIb ou du groupe VIIb, et

(D) de 0 à 20 parties d'un colorant organique activant, sachant que dans les formules R représente un radical hydrocarboné monovalent ou un radical hydrocarboné monovalent halogéné, R^1 représente un radical alkyle en C1-C12, R^2 est choisi dans le groupe constitué par les radicaux que peut représenter R et les radicaux glycidyl-alkyles en C1-C8, a représente un nombre entier compris entre 2 et 4 inclus, b représente un nombre entier compris entre 0 et 2 inclus et la somme de a et de b est égale à 4.

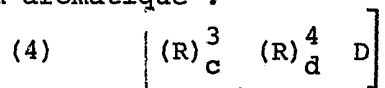
On peut citer parmi les radicaux que peut représenter R dans les formules (1) et (2), par exemple, des radicaux aryles monovalents, des radicaux aryles halogénés monovalents, comme les groupes phényle, xylyle, chlorophényle, naphtyle ; des radicaux aralkyles, comme les groupes benzo, phényléthyle ; des radicaux aliphatiques et cycloaliphatiques comme des radicaux alkyles, alcényles, cycloalkyles, chloroalkyles comme les groupes méthyle, éthyle, propyle, chloropropyle, vinyle, allyle, trifluoropropyle, cyclohexyle, etc., et cyanoéthyle, cyanopropyle, cyanobutyle, etc. On peut citer par exemple, parmi les radicaux que peut représenter R^1 , les groupes méthyle, éthyle, propyle, etc.

Les sels d'onium utilisés dans la mise en pratique de la présente invention répondent à la formule :

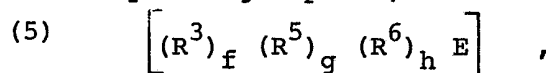


dans laquelle J représente un ion antagoniste (contre-ion) non nucléophile que l'on définira mieux ci-dessous, et Y représente

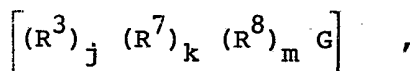
un cation choisi dans le groupe constitué par un cation d'halonium aromatique :



5 un cation aromatique du groupe Vb,



et un cation aromatique du groupe VIb,



10 sachant que dans les formules, R^3 représente un radical organique aromatique monovalent, R^4 représente un radical organique aromatique divalent, R^5 et R^7 représentent des radicaux organiques aliphatiques monovalents choisis dans le groupe constitué par les radicaux alkyles, cycloalkyles et
 15 alkyles substitués, R^6 et R^8 représentent des radicaux organiques polyvalents, choisis dans le groupe constitué par les radicaux aliphatiques et les radicaux aromatiques formant une structure hétérocyclique ou cyclique condensée, avec E ou G, D représente un radical halogène comme I, E représente un élément du groupe Vb choisi parmi N, P, As, Sb et
 20 Bi, G représente un élément du groupe VIb choisi parmi S, Se et Te.

"c" représente un nombre entier égal à 0 ou à 2

"d" représente un nombre entier égal à 0 ou à 1

25 et lorsque c est égal à 0, d est égal à 1,

et lorsque d est égal à 0, c est égal à 2

"f" représente un nombre entier compris entre 0 et 4 inclus,

30 "g" représente un nombre entier compris entre 0 et 2 inclus,

"h" représente un nombre entier compris entre 0 et 2 inclus,

et la somme de "f" + "g" + "h" est égale à 4 ou à la valeur de combinaison de E,

35 "j" représente un nombre entier compris entre 0 et 3 inclus,

"k" représente un nombre entier compris entre 0 et 2 inclus, et

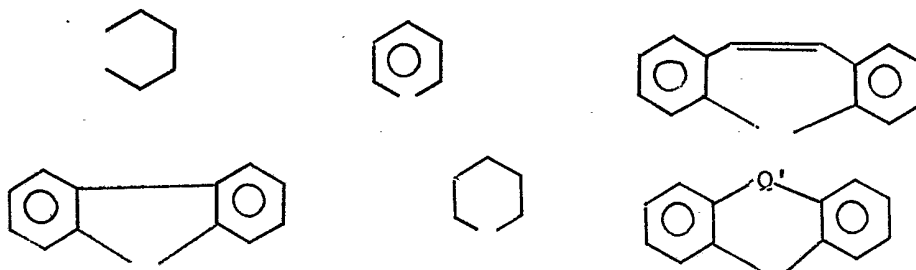
"m" représente un nombre entier égal à 0 ou à 1, et la somme de "j" + "k" + "m" est égale à 3 ou à la valeur de combinaison de G.

R³ peut représenter des radicaux identiques ou différents
 5 aromatiques carbocycliques ou hétérocycliques ayant de 6 à
 20 atomes de carbone, qui peuvent être substitués par de 1
 à 4 radicaux monovalents choisis parmi les radicaux alcoxy
 en C1-C12, alkyles en C1-C12, nitro, chloro, etc. R³ repré-
 sente plus particulièrement le groupe phényle, chlorophényle,
 10 nitrophényle, méthoxyphényle, pyridyle, etc. On peut citer
 parmi les radicaux que peut représenter R⁴ des radicaux diva-
 lents comme :

15



25



30



35

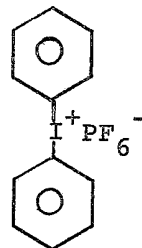
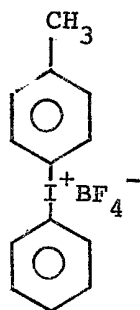
dans lesquelles Q' est choisi dans le groupe constitué par
 -O-, (-CH₂)_n, =N-R' et -S-, n représente un nombre entier
 35 compris entre 1 et 4 inclus, Z est choisi dans le groupe
 constitué par -O-, -S- et $\begin{matrix} R' \\ | \\ -N- \end{matrix}$, et R' est choisi dans le
 groupe constitué par l'hydrogène, les radicaux alkyles en

C1-C8, les radicaux aryles en C6-C13, etc.

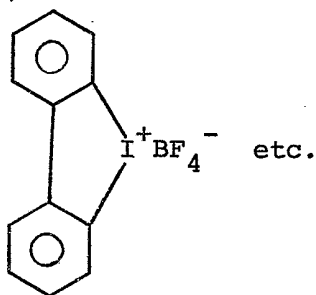
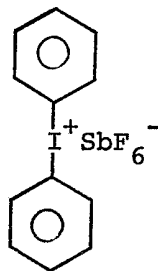
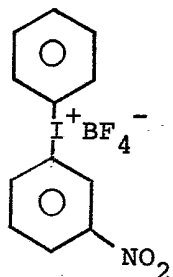
On peut citer parmi les ions opposés non nucléophiles que peut représenter J dans la formule (3) des anions de formule MQ_d , dans laquelle M représente un métal ou un métalloïde, Q représente un radical halogène, et d représente un nombre entier, compris par exemple entre 4 et 6 inclus. De plus, J peut également représenter, dans la formule (3) des contre-ions non nucléophiles comme les ions perchlorate, $CF_3SO_3^-$ et $C_6H_4SO_3^-$, etc. J peut également représenter, dans la formule (3) un contre-ion halogénure comme Cl^- , Br^- , F^- , etc, ou nitrate, phosphate, etc.

On peut citer parmi les métaux ou les métalloïdes que peut représenter M, dans la formule MQ_d indiquée précédemment, pour l'anion non nucléophile que peut représenter J dans la formule (3), des métaux de transition comme Sb, Fe, Sn, Bi, Al, Ga, In, Ti, Zr, Sc, V, Cr, Mn, Cs, des éléments de terres rares comme les lanthanides, et par exemple Cd, Pr, Nd, etc, les actinides et par exemple Th, Pa, U, Np, etc., et des métalloïdes comme B, P, As, etc. On peut citer parmi les anions complexes que peut représenter MQ_d , par exemple, BF_4^- , PF_6^- , AsF_6^- , SbF_6^- , $FeCl_4^-$, $SnCl_6^-$, $SbCl_6^-$, $BiCl_5^-$ etc.

On peut citer, par exemple, parmi les sels d'halonium répondant à la formule (3) et comprenant des cations répondants à la formule (4) :

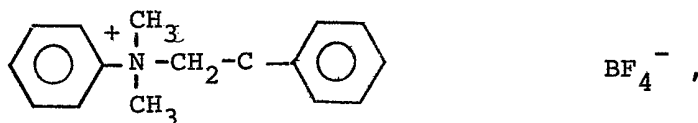


5

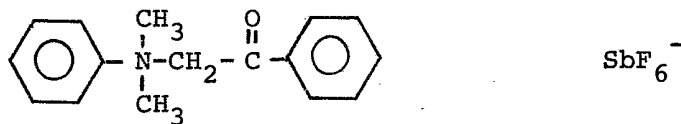


10

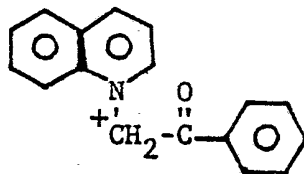
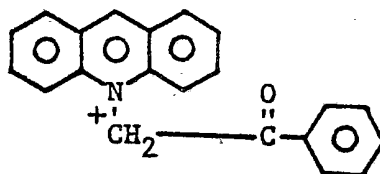
On peut citer par exemple, parmi les sels d'onium d'éléments du groupe Vb répondant à la formule (3) et comprenant des cations répondant à la formule (5) :



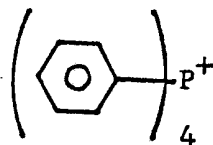
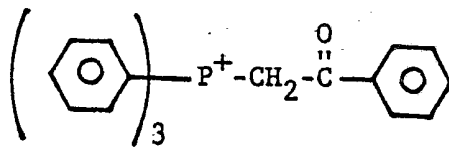
15



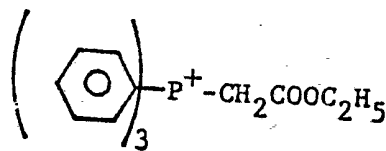
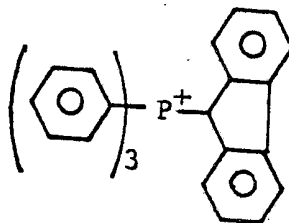
5

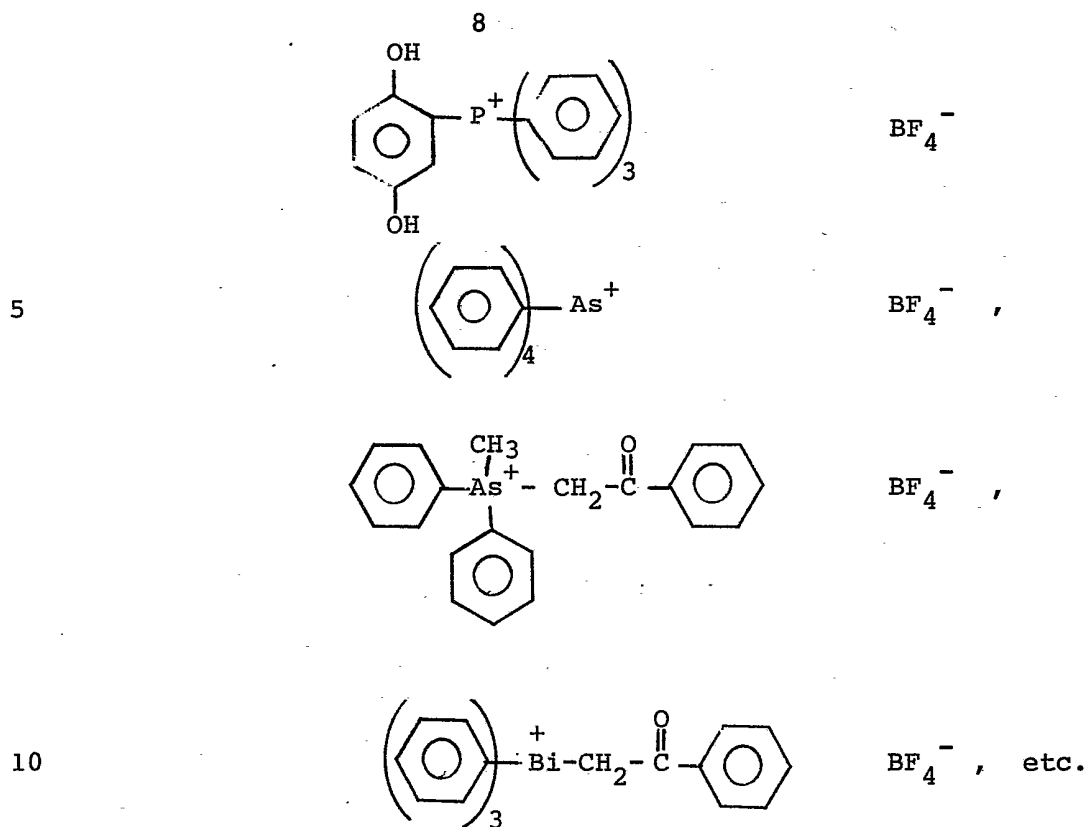
 BF_4^-  BF_4^-

10

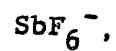
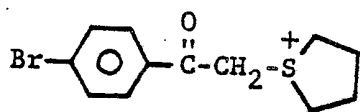
 PF_4^-  AsF_6^-

15

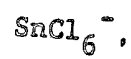
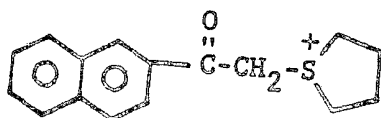
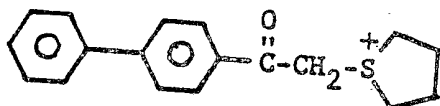
 PF_6^-  BF_4^-



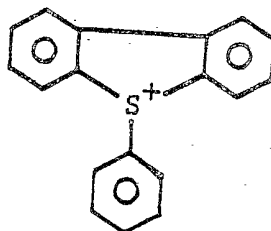
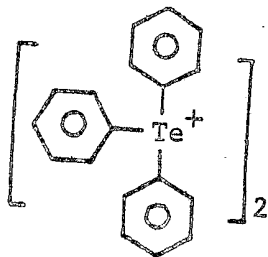
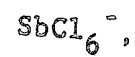
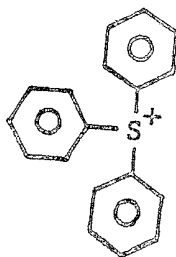
On peut citer par exemple, parmi les sels d'onium d'éléments du groupe VIb répondant à la formule (3) et contenant des cations répondant à la formule (6):

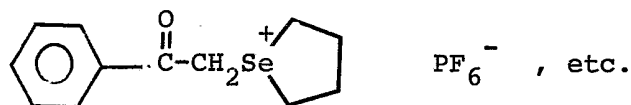


5



10

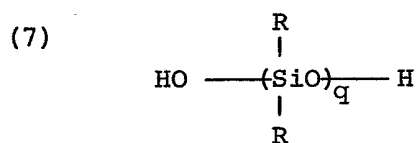




5

On peut citer parmi les polyorganosiloxanes à terminaisons silanol constitués essentiellement de motifs de formule (1) chimiquement combinés, des polydiorganosiloxanes linéaires répondant à la formule

10



15

dans laquelle R est tel que défini précédemment et q représente un nombre entier dont la valeur moyenne est comprise entre environ 5 et 3000 inclus. Ce fluide présente, de préférence, une viscosité comprise entre environ 2000 et

20

terminaisons silanol en traitant un polyorganosiloxane de masse molaire élevée, par exemple un polydiméthylsiloxane, avec de l'eau, en présence d'un acide minéral, ou d'un catalyseur basique pour amener la viscosité du polymère dans la gamme voulue. Les procédés de préparation de ces polyorgano-

25

siloxanes de masse molaire élevée utilisés dans la production du polydiorganosiloxane à terminaisons silanol de formule (7) sont bien connus. On peut par exemple hydrolyser des

30

diorganohalosilanes comme le diméthylchlorosilane, le diphényl-dichlorosilane, le méthylvinylchlorosilane, etc. ou leur mélanges pour produire un hydrolysate de masse molaire peu élevée. On peut ensuite le mettre en équilibre pour obtenir un polyorganosiloxane de masse molaire plus

35

élevée. La mise en équilibre de polysiloxanes cycliques comme l'octaméthyltétrasiloxane cyclique, l'octaphényltétrasiloxane cyclique, ou leurs mélanges permettra également d'obtenir des polymères de masse molaire élevée. On élimine, de préférence, de ces polymères, le catalyseur de mise en

équilibre par des procédés classiques, avant de les utiliser, comme le décrit le brevet des Etats Unis d'Amérique n° 3 153 007.

On peut préparer des polyorganosiloxanes à terminaisons silanol, présentant des viscosités inférieures à 1200 centipoises en traitant des polyorganosiloxanes constitués essentiellement de motifs de formule (I) chimiquement combinés, avec de la vapeur d'eau sous pression. On trouvera d'autres procédés que l'on peut utiliser pour préparer des polyorganosiloxanes à terminaisons silanol, décrits d'une manière plus détaillée, dans le brevet des Etats Unis d'Amérique n° 2 607 792.

On peut citer, par exemple, parmi les alcoxy silanes répondant à la formule (2), le méthyltriméthoxysilane, le diméthyltriméthoxysilane, l'orthosilicate de méthyle, l'orthosilicate d'éthyle, le n-butyltriméthoxysilane, le triméthylméthoxysilane, le méthyltriéthoxysilane, le phényl triméthoxysilane, le diphényldiéthoxysilane, et des produits de condensation de masse molaire plus élevée comme le diméthyltétraméthoxydisiloxane, le glycidyl-2 triméthoxysilane.

On peut citer, par exemple, parmi les colorants organiques que l'on peut utiliser dans la mise en pratique de l'invention, l'orange d'acridine, le jaune d'acridine, la phosphine R, la benzoflavine, l'hématoporphirine, le diéthyl-9,10 anthracène, la cétone de Michler, la sêtoflavine T, le pérylène, le coronène, etc.

Dans la mise en pratique de l'invention, on peut mélanger entre eux les différents constituants du mélange, comme le fluide à terminaisons silanol, l'alcoxysilane, et le sel d'onium. Dans le cas où le sel d'onium et le polydiorganosiloxane à terminaisons silanol ou "fluide à terminaisons silanol" ne forment pas une solution, on peut dissoudre tout d'abord le sel d'onium dans un diluant liquide qui est inerte vis-à-vis des composants du mélange. On peut citer parmi les diluants inertes appropriés, l'éthanol, l'acétate d'éthyle, des éthers, l'acétonitrile, etc. On peut ajouter l'alcoxysilane avant ou en même temps que le sel d'onium au fluide de silanol.

Dans les cas où on souhaite un durcissement sous l'action de la lumière visible, on peut ajouter le colorant organique aux constituants dans une obscurité totale ou partielle pour réduire au minimum l'activation prématurée du sel d'onium.

5 On peut incorporer diverses charges ou pigments à la composition durcissable sous l'action d'un rayonnement, comme par exemple, de la silice, du talc, du mica, du dioxyde de titane, du gypse, de l'oxyde de fer, de l'alumine, de la sciure de bois, des fibres de verre, du graphite, du noir de
10 carbone, du poussier, etc. La quantité de charge que l'on peut utiliser peut varier dans de grandes proportions. Toutefois, le choix de la charge et sa quantité peuvent agir sur l'efficacité du durcissement du mélange, et la quantité peut donc varier largement, en fonction des exigences de l'application
15 et de la longueur du durcissement que l'on peut tolérer. Un mélange classique comprendra, par exemple, de 1 à 30 parties de charge pour 100 parties de fluide à terminaisons silanol.

On peut utiliser les compositions de la présente invention comme agents de scellement pour la construction, composés
20 de calfatage, etc. On peut stocker les compositions de la présente invention pendant une durée illimitée. Dans le cas toutefois où on utilise un colorant organique activant dans le mélange, on doit garder les compositions de polyorgano-siloxane durcissables à l'abri de la lumière du jour pour
25 réduire au minimum l'activation du sel d'onium.

Pour que l'homme de l'art puisse plus facilement mettre l'invention en pratique on donne les exemples suivants, dans un but illustratif, mais ils ne sont pas supposés limiter l'invention. Toutes les parties sont exprimées en poids.

30 Exemple 1

On a étalé un mélange de 10 parties d'un fluide de polydiméthylsiloxane à terminaisons silanol présentant une viscosité de 35.000 centipoises et une teneur en OH de 0,09% de 1 partie d'orthosilicate d'éthyle, et de 0,3 partie
35 d'hexafluoroarséniate de di(n-butyl-4 phényl) iodonium sous la forme d'un film de 0,0762 mm sur une lamelle de verre et on l'a irradié, en utilisant une lampe à arc à vapeur de mercure moyenne pression GE H3T7, à une distance de 17,78 cm. Au bout d'un temps d'irradiation de 20 secondes on a

obtenu un film caoutchouteux.

On immerge un fil de cuivre dans le polyorganosiloxane durcissable sous l'action des U.V. ci-dessus, et on expose le fil revêtu à la lumière ultraviolette, comme on l'a décrit
5 précédemment. On obtient un revêtement adhérent de caoutchouc de silicone élastomérique pouvant servir de revêtement isolant sur le fil après 10 secondes d'exposition.

Exemple 2.

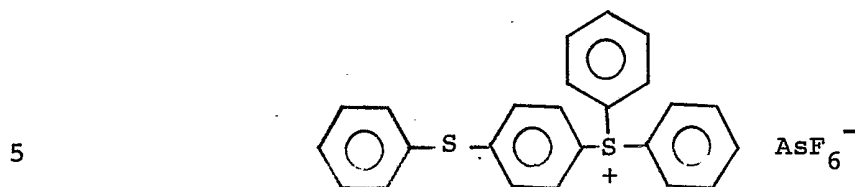
On a répété le procédé de l'exemple 1, excepté que l'on
10 a utilisé du méthyltriéthoxysilane à la place de l'orthosilicate d'éthyle. On a étalé la composition de silicone durcissable sous la forme d'un film de 0,0254 mm sur une lamelle de verre et on l'a irradiée à une distance de 17,78 cm conformément au procédé de l'exemple 1. On a obtenu un film caout-
15 chouteux réticulé après 10 secondes d'irradiation. Lorsqu'on a étalé la même composition de silicone durcissable sur du papier kraft sous la forme d'un film de 0,0025 mm et qu'on l'a faite durcir de la manière indiquée ci-dessus, on n'a pas pu lier de manière permanente des papiers revêtus d'adhésifs
20 de contact résistants au papier kraft. Le revêtement était non-tachant et ne pouvait pas être enlevé par frottement.

Exemple 3.

On a préparé une solution comprenant 0,2 g d'hexafluoro-arséniate de di(n-butyl-4 phényl) idonium, 10 g de fluide
25 de polydiméthylsiloxane à terminaisons hydroxy difonctionnel présentant une viscosité de 35.000 cp, et 1 g d'orthosilicate de méthyle. On a déposé le mélange ci-dessus sous la forme d'un film de 0,0254 mm sur une plaque d'aluminium et on l'a exposé à une distance de 7,62 cm d'une lampe GE H3T7. Quinze
30 secondes d'irradiation ont suffi pour conduire à un revêtement caoutchouteux non poisseux.

Exemple 4.

On a préparé un mélange polymérisable en utilisant
1 partie d'un fluide de polydiméthylsiloxane à terminaisons
35 hydroxy présentant une viscosité de 47.000 cp, 5 parties de glycidyl-2 triméthoxysilane et 0,1 partie d'un sel de phénylthiotriphénylsulfonium répondant à la formule :



Lorsqu'on a irradié le mélange ci-dessus pendant 1,0 minute, sous la forme d'un film de 0,0254 mm déposé sur une lamelle de verre, on a obtenu un film dur transparent. On a mis en oeuvre l'irradiation en utilisant une lampe à arc à vapeur de mercure moyenne pression GE H3T7.

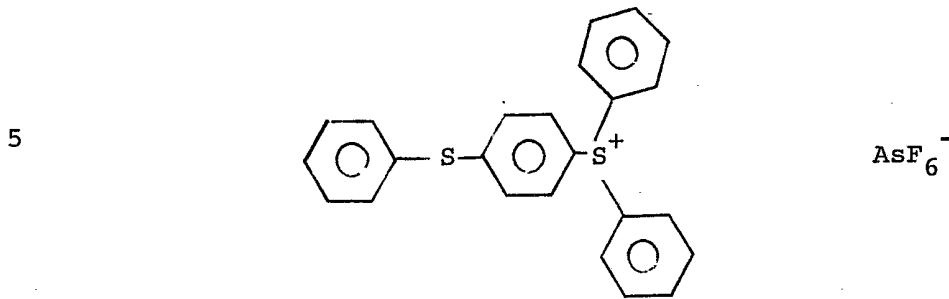
On a préparé le sel de phénylthiotriphénylsulfonium précédent de la manière suivante :

15 On a chauffé un mélange de 19,6 parties d'hydroxyde de potassium à 86% de 33 parties de thiophénol et d'environ 120 parties de diméthylacétamide à une température de 120°C en agitant, pour éliminer l'eau. Lorsqu'on a eu recueilli environ 6,5 parties d'eau, on a ajouté au mélange résultant 26,3

20 parties de para-dibromobenzène et on a chauffé le mélange au reflux. Après 6 heures de chauffage au reflux, on a laissé refroidir le mélange et on a ajouté 300 parties d'eau. On a obtenu un solide de couleur havane que l'on a filtré et lavé à l'eau plusieurs fois. On a ensuite séché le produit. On a

25 obtenu 34,7 parties de dithio phénoxy-1,4 benzène, d'après le procédé de préparation. On a chauffé un mélange de 7,35 parties du disulfure précédent, de 11,75 parties d'hexafluoroarséniate de diphenyliodonium et de 0,2 partie de benzoate de cuivre, 3 heures à 120°C. On a lavé plusieurs fois le mélange de réaction résultant avec environ 50 parties d'oxyde diéthylique et on a fait recristalliser le solide restant de sa solution à 95% d'éthanol. On a obtenu un rendement de 45%

30 d'un produit cristallin de couleur havane très clair présentant un point de fusion de 69.75° , et l'analyse élémentaire suivante : calculé C : 51,3%, H: 3,50%, S: 11,43%, Trouvé C: 51,21%, H: 3,59 %, S: 11,37%. D'après le procédé de préparation, on a obtenu un sel de triarylsulfonium répondant à la formule :



10 Exemple 5

on a ajouté 0,02 partie de pérylène utilisé comme acti-
 vant au mélange de réaction de l'exemple 4. On a ensuite dépo-
 sé le mélange sur une lamelle de verre et on a placé une autre
 lamelle de verre sur la première pour effectuer une liaison
 15 verre-verre. Après avoir irradié le mélange à travers le verre
 pendant 1,5 minute, en utilisant un projecteur de lumière vi-
 sible GE EBR 375W, on a obtenu une liaison permanente.

Exemple 6

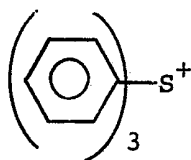
On a ajouté 1 partie d'un polydiméthylsiloxane à termi-
 20 naisons hydroxy présentant une viscosité de 47.000 centipoises
 et 0,1 partie d'hexafluoroantimoniate de didodécylphényliodo-
 nium à 4 parties d'éthyltriméthoxysilane. On a déposé la solu-
 tion sous la forme d'un film de 0,0508 mm sur un panneau d'alu-
 minium et on l'a irradié à l'aide d'une lampe à arc à vapeur
 25 de mercure moyenne pression GE H3T7 placée à une distance de
 15,24 cm. Le film a durci pour se transformer en un film dur
 transparent au bout d'une minute d'irradiation continue.

Exemple 7

On a ajouté 0,01 partie de pérylène à la solution de
 30 l'exemple 6 et on a déposé le film de la manière précédente
 sur un panneau d'aluminium. On a irradié le panneau avec de
 la lumière visible en utilisant un projecteur GE EBR 374 W. On
 a obtenu un film transparent dur au bout d'une minute d'irra-
 diation en utilisant la lampe ci-dessus placée à une distance
 35 de 10,16 cm.

Exemple 8

On a répété l'exemple 6, excepté que l'on a remplacé le
 photoinitiateur par



5

Un temps de durcissement de 1,5 minute a été nécessaire pour obtenir un revêtement dur non collant.

Bien que les exemples ci-dessus ne concernent que quelques unes des très nombreuses compositions de silicone dur-

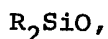
10 cissables sous l'action d'un rayonnement conformes à la présente invention, il faut comprendre que la présente invention concerne une variété beaucoup plus grande de compositions de silicone à base de polydiorganosiloxanes à terminaisons silanol

15 d'onium aromatiques tels qu'indiqués dans la description précédente et éventuellement d'un colorant organique activant.

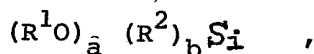
REVENDEICATIONS

1. Composition de polyorganosiloxane durcissable sous l'action d'un rayonnement caractérisée en ce qu'elle comprend:

(A) 100 parties d'un polyorganosiloxane à terminaisons silanol constitué essentiellement de motifs répondant à la formule :



(B) de 2 à 200 parties d'un alcoxysilane répondant à la formule :



(C) de 0,1 à 20 parties d'un sel d'onium d'un élément du groupe Vb, du groupe VIb ou du groupe VIIb et,

(D) de 0 à 20 parties d'un colorant organique activant ; sachant que, dans les formules, R est choisi dans le groupe constitué par les radicaux hydrocarbonés monovalents et les radicaux hydrocarbonés monovalents halogénés, R^1 est choisi parmi les radicaux alkyles en C1-C12, R^2 est choisi dans le groupe constitué par les radicaux que peut représenter R et les radicaux glycidylalkyles en C1-C8, a représente un nombre entier compris entre 2 et 4 inclus, b représente un nombre entier compris entre 0 et 2 inclus et la somme de a et de b est égale à 4.

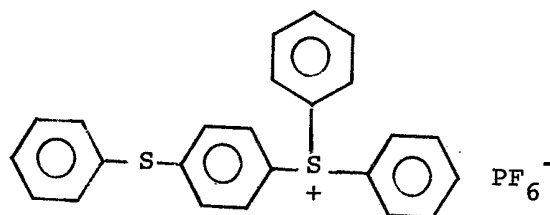
2. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le polydiorganosiloxane à terminaisons silanol est un polydiméthylsiloxane à terminaisons silanol.

3. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que l'alcoxysilane est l'orthosilicate d'éthyle.

4. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le sel d'onium est l'hexafluoroarséniate de di(n-butyl-4 phényl) iodonium.

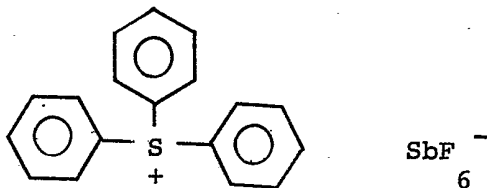
5. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le sel d'onium est :

35



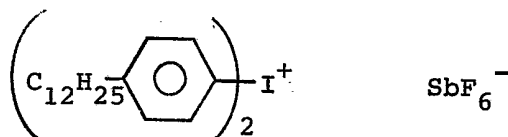
6. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le sel d'onium est

5



7. Composition selon la revendication 6, caractérisée en ce que le sel d'onium est :

10



15

8. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le colorant est le pérylène.

9. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que le colorant est la cétone de Mitchler.