

## **EXAMEN EUROPEEN DE QUALIFICATION 1996**

### **EPREUVE B CHIMIE**

**Cette épreuve contient :**

- \* Instructions aux candidats
- \* Description de la demande
- \* Revendications
- \* Notification
- \* Document I (Etat de la technique)
- \* Document II (Etat de la technique)
- \* Document III (Etat de la technique)
- \* Lettre du client

## INSTRUCTIONS AUX CANDIDATS

Dans cette épreuve, vous devez supposer qu'une demande de brevet européen pour tous les Etats Contractants comportant les documents ci-joints (\*) a été déposée, et que l'Office européen des brevets a émis la notification officielle jointe en annexe. Le sujet de l'épreuve peut comporter une lettre du client contenant des instructions quant à la manière dont votre client désire poursuivre la demande de brevet européen.

Vous devez accepter les faits exposés dans le sujet de l'épreuve et fonder vos réponses sur ces faits. Vous décidez sous votre propre responsabilité si vous faites usage de ces faits, et dans quelle mesure.

Vous ne devez faire usage d'aucune connaissance particulière que vous pourriez avoir sur l'objet de l'invention, mais vous devez admettre que l'état de la technique indiqué est effectivement exhaustif.

Il vous est demandé de rédiger une réponse complète à la notification officielle. La réponse devrait être constituée par une lettre adressée à l'OEB, accompagnée, le cas échéant, d'un jeu modifié de revendications. Toutefois, vous ne devez pas modifier la description.

Les revendications doivent procurer la protection la plus étendue possible, tout en satisfaisant aux exigences de la convention. Dans votre réponse, vous devez exposer vos arguments à l'appui de la brevetabilité de la ou des revendications indépendantes.

Si vous considérez qu'une partie de la demande devrait faire l'objet d'une ou de plusieurs demandes divisionnaires, vous devez alors, dans une note, indiquer clairement l'objet de la revendication indépendante de chaque demande divisionnaire et votre raison d'agir ainsi. Il n'est toutefois pas nécessaire de rédiger le texte de la revendication indépendante de chaque demande divisionnaire.

Outre la solution que vous aurez choisie, vous pouvez, mais ce n'est pas obligatoire, indiquer dans une note les raisons du choix de votre solution, par exemple pourquoi vous avez choisi telle ou telle forme de revendication, telle ou telle caractéristique pour une revendication indépendante, tel ou tel élément de l'état de la technique comme point de départ, ou pourquoi vous avez rejeté ou préféré un élément particulier de l'état de la technique. Toute note de ce genre devrait cependant être brève.

Nous supposons que vous avez étudié le sujet de l'épreuve dans la langue que vous utilisez pour rédiger votre réponse. S'il n'en est pas ainsi, veuillez indiquer sur la première page de votre réponse la langue dans laquelle vous avez étudié le sujet de l'épreuve. Cette indication est obligatoire pour tous les candidats qui, après en avoir fait la demande lors de l'inscription à l'examen, rédigent leur réponse dans une langue autre que l'allemand, l'anglais ou le français.

---

(\*) Ces documents ne constituent pas nécessairement la seule ni la meilleure solution de l'épreuve A.

## DESCRIPTION DE LA DEMANDE

La présente invention a pour objet le développement et la fabrication de dispositifs correcteurs pour la vue. Pour des raisons d'esthétique, mais en partie également pour des raisons médicales, les dispositifs correcteurs de la vue portés directement sur la cornée prennent une importance croissante. Ces dispositifs correcteurs sont communément appelés lentilles de contact.

On a déjà décrit différents genres de lentilles de contact et on renvoie par exemple au **document I** qui décrit les questions importantes de ce domaine technique. En ce qui concerne la description du développement des lentilles de contact et les problèmes connexes et l'explication des concepts techniques spécifiques au domaine, il est expressément fait référence au **document I**.

Le **document I** a pour objet des polymères limpides, hautements résistants et réticulés que l'on obtient par la copolymérisation (**A**) d'un macromère de polysiloxane linéaire ou ramifié et (**B**) de monomères de vinyle et, le cas échéant, de divinyle, étant entendu que 85 à 100 % de ces monomères ne sont pas solubles dans l'eau. Ces polymères sont utilisables pour la fabrication de lentilles de contact souples ou dures, notamment de lentilles de contact dures. Le macromère de polysiloxane contient au moins deux groupes vinyle polymérisables terminaux ou répartis sur la chaîne et liés au polysiloxane par un groupe uréthane.

La présente invention concerne exclusivement des polymères pour des lentilles de contact "dures". On attache de plus en plus d'importance au confort lors du port des lentilles de contact, c.-à-d. à la possibilité de porter les lentilles sans problème même pendant une longue durée. Le confort précité dépend de la combinaison des caractéristiques suivantes : En premier lieu, il convient de mentionner une perméabilité spécifique à l'oxygène élevée, combinée à une absence de réactions allergiques et d'irritations des yeux. De plus, la résistance aux rayures des lentilles devrait être aussi élevée que possible afin d'éviter une réduction de la durée d'utilisation par une détérioration des propriétés optiques ou du confort de port des lentilles. Les lentilles dures se brisent plus facilement que les lentilles souples. Leur résistance mécanique doit donc répondre à des exigences élevées. Le marché n'accepte plus des lentilles fragiles. En dernier lieu, la lentille devrait posséder une surface hydrophile (c.-à-d., une bonne mouillabilité par l'eau) et conserver cette propriété pendant toute la durée d'utilisation. La condition de base pour la fabrication de lentilles de contact est donc de disposer d'un polymère limpide et exempt d'ondes.

Les premiers matériaux utilisés pour la fabrication de lentilles de contact étaient constitués par le polyméthacrylate de méthyle et, plus tard, par des polymères de méthacrylates d'alkyle substitués comme, par exemple, le méthacrylate de 2-hydroxyéthyle (**HEMA**). Ces derniers monomères ont conduit en général à des lentilles souples gonflant fortement dans l'eau.

L'incorporation, par copolymérisation, d'acrylates ou de méthacrylates de fluoroalkyle et/ou de macromères de silicone dans de tels polymères a conduit à l'obtention de perméabilités spécifiques à l'oxygène accrues mais, à cause de cela, l'hydrophilie des lentilles a été diminuée. Le confort de port en a été diminué. De même, la résistance mécanique des lentilles en a souvent pâti. Par macromères de silicone, de siloxane ou de polysiloxane, on désigne des polysiloxanes possédant des groupes éthyléniquement insaturés polymérisables.

Il a été trouvé que les inconvénients de l'état de la technique peuvent être évités en ayant recours à la copolymérisation, dans des proportions quantitatives données, de certains monomères contenant des groupes de siloxane avec certains comonomères copolymérisables avec eux (composants (**A**) à (**D**) décrits ci-après).

La présente invention concerne par conséquent des copolymères réticulés et limpides selon la revendication 1. Les polymères finis contiennent des unités de ces monomères dans des proportions de poids pratiquement identiques à celles des mélanges de monomères mêmes. Les monomères proprement dits ne sont pas l'objet de la présente invention et ce d'autant plus qu'ils sont disponibles dans le commerce.

De plus, l'invention concerne également un procédé de fabrication de ces polymères. Ce procédé est caractérisé en ce qu'à partir des monomères dans les quantités indiquées et de l'initiateur on forme un mélange limpide, que ce mélange est dégazé par l'application d'un vide avant la polymérisation pendant une courte durée et que la polymérisation est ensuite initiée sous gaz de protection inerte.

Ces polymères se prêtent de façon excellente à la fabrication de lentilles de contact. Un autre aspect de l'invention concerne par conséquent les lentilles de contact fabriquées à partir de ce matériau ainsi qu'un procédé de fabrication. Selon ce mode de réalisation, la polymérisation est effectuée à l'intérieur d'un moule, l'ébauche de lentille ainsi obtenue est amenée à la forme désirée par usinage mécanique et les surfaces de la lentille ainsi obtenue sont finalement polies.

Le composant (A) est constitué principalement ou totalement par des monomères contenant des groupes de siloxane, ci-après désignés par le terme siloxanes réactifs (A'). Dans un but de clarté, il doit être noté que la notion de "monomère" telle qu'utilisée ici est censée englober tous les composés pouvant être (co)polymérisés et par conséquent aussi les oligomères éthyléniquement insaturés.

Les siloxanes réactifs (A') que nous mettons en oeuvre ont une structure qui correspond à celle décrite dans le **document I** par la formule (1). A cet égard, il convient de retenir que dans le cas présent, il n'est pas non plus obligatoire que des blocs de polymère séparés soient présents dans le siloxane. Alors que dans le cas des macromères de silicone utilisés dans le **document I** le nombre de la totalité des unités siloxane (= degré de polymérisation) est compris entre 500 et 1000, les composés de siloxane utilisés ici ont un degré de polymérisation de jusqu'à 150, de préférence de 100 à 150. Ce type de composé présentant un degré de polymérisation aussi limité est fréquemment qualifié d'oligomère. Dans le cas des siloxanes réactifs (A') selon la formule (1) utilisés ici, les restes **R** ont indépendamment les uns des autres les significations alkyle en  $C_1$  à  $C_4$  et/ou phényle. Il est constaté de manière générale que l'hydrophilie diminue au fur et à mesure de l'augmentation du nombre des atomes de carbone dans les restes **R**. En d'autres termes, l'hydrophobie augmente fortement de  $C_1$  à  $C_4$ . Pour cette raison les restes à chaîne courte, par exemple, méthyle et éthyle, en particulier le radical méthyle, sont préférés. Par la sélection de ces restes **R** il est également possible d'influencer les propriétés optiques.

Le nombre des restes **R<sup>1</sup>-X-** dans chacun desquels un groupe **R<sup>1</sup>** éthyléniquement insaturé est lié à un atome de silicium du siloxane réactif par l'intermédiaire d'un reste uréthane **X** est, selon cette invention, au moins égal à 1. Ce nombre ne peut cependant pas être supérieur à 25 % par rapport à la totalité de tous les restes organiques (**R** et **R<sup>1</sup>-X-**) liés à du silicium. Comme le démontrent les exemples suivants, on obtient des produits d'une qualité particulièrement bonne du point de vue du gonflement et de la résistance mécanique lorsque le nombre de tous ces restes insaturés est de l'ordre de 5 à 10 % du nombre total de tous ces restes **R** et **R<sup>1</sup>-X-**. Pour la fabrication de ces siloxanes réactifs, il est renvoyé à notre exemple 1 et au **document I**.

Ces siloxanes réactifs sont polymérisés avec des comonomères constitués en majorité d'esters alkylés de l'acide méthacrylique (= méthacrylates d'alkyle) (**B**). En raison des qualités requises pour les polymères, on a recours exclusivement aux méthacrylates d'alkyle en  $C_1$  à  $C_5$ . Parmi ceux-ci, l'ester d'éthyle et surtout de méthyle sont préférés étant donné que la souplesse des

polymères augmente avec la longueur du groupe alkyle de l'ester de l'acide méthacrylique et avec la proportion de ces esters d'alkyle à chaîne longue.

En tant qu'autre composant essentiel on copolymérise des acrylates et/ou méthacrylates d'alkyle (C) contenant des groupes hydroxy pour améliorer l'hydrophilie. Il convient de mentionner les méthacrylates et les acrylates d'alcanediols possédant un groupe hydroxy libre. On utilise de préférence le méthacrylate d'hydroxyéthyle ou d'hydroxypropyle.

La résistance mécanique élevée souhaitée est obtenue le plus facilement à l'aide de polymères réticulés. On ajoute par conséquent au mélange réactif comme agents réticulants (D) des monomères plusieurs fois éthyléniquement insaturés, dans la mesure où les siloxanes réactifs n'agissent pas déjà suffisamment comme composants de réticulation grâce au fait qu'ils comportent plusieurs groupes  $R^1-X$ -éthyléniquement insaturés. A titre d'agents réticulants de ce genre il n'est possible de prendre en considération que des composés comportant au moins deux groupes éthyléniquement insaturés polymérisables. A titre d'exemple, on ne mentionnera que le diacrylate ou diméthacrylate de néopentylglycol. Une réticulation plus forte, pour une composition monomérique identique, rend le polymère plus dur et diminue sa capacité de gonflement.

Pour obtenir des polymères qui répondent aux exigences posées, on copolymérise les polymères dans les quantités suivantes : le composant (A) en des quantités de 15 à 40 % en poids, les méthacrylates d'alkyle (B) dans une proportion de 40 à 80 % en poids, les (méth)acrylates (C) contenant des groupes hydroxy en des quantités de 2 à 10 % en poids et les agents réticulants (D) en des quantités jusqu'à 10 % en poids. Il est déterminant pour le polymère en formation que son degré de réticulation se situe dans une zone qui évite un gonflement du polymère par l'eau de plus de 10 % en volume afin d'atteindre une stabilité suffisante de la forme du polymère et des lentilles de contact fabriquées à partir de celui-ci. Par ailleurs, la dureté Shore-D ne devrait pas être supérieure à 85. Cette limite s'est révélée utile comme indication simple de la limite de la résistance mécanique exigée.

En ce qui concerne le composant (A), une partie des siloxanes réactifs (A') peut, de plus, être remplacée par des méthacrylates de fluoralkyle (A'') dont les groupes fluoralkyle comportent de 2 à 10 atomes de carbone. La quantité de ces monomères fluorés ne doit pas dépasser 10 % en poids de la quantité totale des composants (A) à (D). Plus le groupe fluoroalkyle est long et plus la quantité totale de ce monomère fluoré (A'') et du siloxane réactif (A') est grande, moins le polymère est hydrophile. La quantité totale de ce composant (A), c'est-à-dire (A') + (A''), ne devrait donc en aucun cas dépasser 40 % en poids car dans le cas contraire l'hydrophilie tomberait au-dessous d'une valeur-limite acceptable. Celle-ci est définie par un angle de contact d'au moins 100° (voir le **document I**).

Les monomères sont mélangés dans les proportions pondérales indiquées et on y ajoute de 0,001 à 0,5 % en poids d'initiateur (E). On n'ajoute au mélange aucune autre substance telle que, par exemple, un solvant. Le mélange de monomères doit déjà être parfaitement limpide et exempt d'ondes. On a constaté lors de nombreux essais qu'à partir de mélanges de monomères non exempts d'ondes on obtient toujours des polymères inutilisables pour les utilisations prévues, c.-à-d. des polymères non satisfaisants du point de vue optique.

Pour éviter des bulles de gaz incluses, le mélange est brièvement placé sous vide pendant un court laps de temps avant le déclenchement de la polymérisation. Après ce dégazage, la polymérisation est déclenchée sous gaz inerte de protection ou bien de manière thermique (par des initiateurs radicalaires peroxydiques) ou bien de manière photochimique (par un photoinitiateur). Les polymères peuvent être considérés comme étant identiques indépendamment de la méthode d'initiation de la réaction. Le degré de polymérisation des polymères est amené

dans le domaine requis à l'aide de la quantité indiquée d'initiateurs et à l'aide d'une température de réaction ne dépassant pas 60° C.

Habituellement on réalise la polymérisation en vue de la fabrication de lentilles de contact à l'intérieur d'un moule dont la cavité correspond approximativement à la forme de la lentille et permet ainsi de fabriquer directement des ébauches de lentilles. On obtient ainsi une bonne élimination de la chaleur de réaction et on diminue davantage le risque de formation d'ondes. Pour réduire encore davantage ce risque, la polymérisation est initiée de préférence de manière photochimique. On évite ainsi la nécessité d'un apport de chaleur depuis l'extérieur et une surchauffe du mélange réactionnel.

De plus, la polymérisation à l'intérieur du moule simplifie la suite de l'élaboration et diminue des pertes de substance importantes. Les ébauches reçoivent ensuite leur forme définitive par usinage mécanique. Les surfaces subissent ensuite un polissage. Ces étapes de transformation, de pratique courante pour l'homme du métier, sont d'autant plus simples que le polymère est indéformable.

Les exemples suivants expliqueront plus amplement l'invention. En ce qui concerne les méthodes de mesure utilisées, nous renvoyons à leur description dans le **document I**.

#### Exemple 1

Comme décrit dans le **document I**, on a préparé un siloxane réactif ayant trois groupes méthacrylate polymérisables liés à des groupes siloxane à partir d'oligomère de diméthylsiloxane ayant un degré de polymérisation de 100 et possédant dans sa molécule trois groupes d'hydroxyéthyle, de diisocyanate et de méthacrylate d'hydroxyéthyle (**HEMA**).

#### Exemples 2-7

Après addition d'un photoinitiateur UV commercialisé sous l'appellation "UVInit A" en une proportion de 0,2 % en poids, on a copolymérisé entre des plaques de verre quartzes préalablement rendues antiadhésives le siloxane réactif préparé dans l'exemple 1 avec les monomères indiqués dans le tableau 1, par exposition à un rayonnement UV, pour former des feuilles d'une épaisseur de 0,1 mm. Sur ces feuilles on a effectué des mesures pour la détermination de la perméabilité spécifique à l'oxygène (**O<sub>2</sub>-DK**). On a également préparé de la même façon des feuilles d'une épaisseur de 1 mm à partir de chaque mélange de monomères en vue de la détermination de la mouillabilité par l'eau.

De manière analogue et comme décrit dans le **document I**, on a également préparé des échantillons pour la détermination de la dureté et on a examiné ces échantillons.

Le gonflement par l'eau a été déterminé à partir de l'augmentation du volume d'échantillons après un maintien de 48 heures dans de l'eau distillée à 20° C. Les échantillons ont été préparés comme décrit en rapport avec la préparation des échantillons destinés au test de dureté. La valeur de la dureté Shore-D ne devrait jamais être inférieure à 70. En dessous de cette valeur, les polymères deviennent trop mous. Dans le tableau 1 on a résumé les résultats obtenus.

#### Exemples 8-10

D'une manière analogue à l'exemple 1, on a préparé un siloxane réactif d'un degré de polymérisation de 100 et comprenant des groupes méthacrylate polymérisables dont le nombre était 10 % de tous les groupes organiques liés à des groupes siloxane. On a répété les exemples 2, 3 et 4 avec ce siloxane réactif. Les résultats figurent au tableau 1.

Les essais effectués à l'aide de divers photoinitiateurs du commerce ou d'initiateurs radicalaires peroxydiques solubles dans les monomères ont toujours fourni des polymères contenant des

teneurs résiduelles négligeables en monomères.

Les polymères peuvent en outre être mis en oeuvre pour d'autres utilisations dans lesquelles on a besoin d'une bonne limpidité et une bonne mouillabilité par l'eau, p. ex., pour des récipients ou des lentilles optiques.

Tableau 1

| Ex. | Comonomères (% en poids, siloxane réactif pour faire le total de 100 %) | Aspect  | O <sub>2</sub> -DK | Angle de contact | dureté Shore-D | Gonflement (% en vol.) |
|-----|-------------------------------------------------------------------------|---------|--------------------|------------------|----------------|------------------------|
| 2   | MMA (60) HEMA (4)                                                       | limpide | 34                 | 110°             | 73             | 6,9                    |
| 3   | MMA (66) HEMA (4)                                                       | limpide | 28                 | 117°             | 75             | 7,4                    |
| 4   | MMA (73) HEMA (4)                                                       | limpide | 17                 | 123°             | 80             | 8,7                    |
| 5*  | MMA (87) HEMA (4)                                                       | limpide | 7,5                | 124°             | 83             | 9,5                    |
| 6   | MMA (60) NPDA (4) HEMA (4)                                              | limpide | 25                 | 117°             | 77             | 5,9                    |
| 7   | MMA (60) FPMA (4) HEMA (4)                                              | limpide | 33                 | 101°             | 70             | 7,5                    |
| 8   | MMA (60) HEMA (4)                                                       | limpide | 34                 | 110°             | 79             | 5,2                    |
| 9   | MMA (66) HEMA (4)                                                       | limpide | 28                 | 118°             | 81             | 5,6                    |
| 10  | MMA (73) HEMA (4)                                                       | limpide | 16                 | 123°             | 83             | 5,9                    |

MMA = méthacrylate de méthyle

FPMA = méthacrylate d'hexafluoroisopropyle

HEMA = méthacrylate de 2-hydroxyéthyle

NPDA = diacrylate de néopentylglycol

\* Exemple comparatif

## REVENDICATIONS

1. Copolymères réticulés, limpides d'un taux de réticulation empêchant un gonflement des polymères par l'eau de plus de 10 % en volume et d'une dureté Shore-D d'au plus de 85 susceptibles d'être obtenus par copolymérisation de mélanges de monomères limpides et exempts d'ondes contenant de 0,001 à 0,5 % (en poids par rapport aux monomères) d'initiateur (E) à partir de :
  - (A) 15 à 40 % en poids d'un composant de siloxanes réactifs (A') selon la formule (1)
$$R_3Si-O-[(R^1-X)Si(R)-O]_m-[Si(R)_2-O]_n-SiR_3 \quad (1)$$
dans laquelle le nombre des unités de siloxane est au plus de 150, R = indépendamment les uns des autres est alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub> ou phényle, dans laquelle il y a au moins un reste R<sup>1</sup>-X- ayant la signification indiquée dans la description et dans laquelle le nombre des restes R<sup>1</sup>-X- représente au plus 25 % du nombre total de tous les restes organiques liés au silicium ; étant entendu que (A') peut, le cas échéant, être partiellement remplacé par (A'') des méthacrylates de fluoralkyle, dans lesquels le groupe fluoralkyle possède de 2 à 10 atomes de carbone, en une quantité d'au plus de 10 % en poids par rapport au poids total des composants (A) à (D),
  - (B) 40 à 80 % en poids d'esters alkylés de l'acide méthacrylique dont le groupe alkyle possède de 1 à 5 atomes de carbone,
  - (C) 2 à 10 % en poids d'acrylates et/ou de méthacrylates comportant des groupes hydroxy, ainsi que
  - (D) 0 à 10 % en poids de composés ayant au moins deux groupes éthyléniquement insaturés copolymérisables.
2. Procédé de fabrication de polymères selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on prépare à partir des monomères dans les quantités indiquées et de l'initiateur un mélange limpide et qu'avant la polymérisation on dégaze le mélange par une mise sous vide de courte durée et que l'on initie ensuite la polymérisation sous gaz protecteur inerte.
3. Utilisation des polymères selon la revendication 1 pour la fabrication de lentilles de contact.
4. Lentille de contact fabriquée à partir d'un polymère selon la revendication 1.
5. Procédé de fabrication d'une lentille de contact selon la revendication 4 par le procédé selon la revendication 2 caractérisé en ce que la polymérisation est effectuée à l'intérieur d'un moule, et en ce que l'on confère ensuite à l'ébauche ainsi obtenue la forme désirée par usinage mécanique et en ce que la surface de la lentille ainsi obtenue est enfin polie.



## NOTIFICATION

1. Avant de prendre position à l'égard de la brevetabilité, il est indiqué que les revendications ne satisfont pas aux conditions de l'art. 84. Ainsi, et contrairement à la règle 29 (6) CBE, la définition du groupe **R<sup>1</sup>-X-** n'est pas indiquée à la revendication 1.

Selon la description la limite inférieure de la dureté Shore-D des polymères se situe vers 70, celle de l'angle de contact vers 100° et dans le procédé de fabrication revendiqué une température de réaction de 60° C ne doit pas être dépassée. Ces caractéristiques devraient également être exprimées dans les revendications.

2. Le **document II** décrit des polymères transparents qui ont été préparés à partir des mêmes monomères que dans la présente demande. Les quantités de monomères mises en oeuvre semblent être également identiques (voir par exemple l'exemple du document). Il en va de même pour les initiateurs utilisés dans les mélanges de monomères homogènes. Selon la page 5 et l'avant-dernier alinéa de la description, les polymères doivent être considérés comme identiques, indépendamment de l'initiateur utilisé, ce qui fait que la limitation à la polymérisation par initiation photochimique ne saurait être considérée comme appropriée à la délimitation. Dans le document il est également recommandé de dégazer le mélange réactionnel avant la polymérisation. Les revendications 1 et 2 ne sont donc pas nouvelles par rapport au **document II** (art. 52 (1) et 54 (1) et (2) CBE).
3. De même, le mélange de monomères du **document III** correspond à la définition contenue dans la revendication 1. Ceci s'applique notamment au siloxane réactif du **document III**, qui correspond à la définition de la formule (I) de la revendication 1 (**m**=1) ; cf. Directives relatives à l'examen C-IV, 7.4.
4. De plus, le **document III** suggère sans équivoque l'utilisation des polymères obtenus pour la fabrication de lentilles de contact. Le document recommande en plus la polymérisation dans un moule et l'usinage mécanique de l'ébauche de la lentille de la même façon que celle décrite à la revendication 5.
5. Le **document III** antécipise donc visiblement les objets des revendications 3 à 5 (art. 52 (1) et 54 (1) et (2) CBE).
6. Le **document III** donne également des indications sur la possibilité de faire varier comme désiré les propriétés des polymères et des lentilles de contact par la sélection et la quantité des composants. Il conviendrait d'en tenir compte dans une argumentation éventuelle si la nouveauté des revendications pouvait être établie. Il conviendrait alors également de tenir compte de la description du **document I** où l'on utilise le même photoinitiateur pour la fabrication des polymères destinés aux lentilles de contact.
7. Vous êtes invités à présenter des revendications qui prennent en compte des susdites objections et qui répondent aux exigences de la CBE, notamment en ce qui concerne la nouveauté, l'activité inventive, la clarté, la divulgation initiale et l'unité (art. 54 (1) et (2), 56, 84, 123 (2) et 82 CBE).

Vous devrez également indiquer dans votre réponse la différence entre les nouvelles revendications et l'état de la technique ainsi que la signification que revêt cette différence, présenter l'invention de façon à rendre compréhensible non seulement le problème technique à résoudre par rapport à l'état de la technique et la solution trouvée (cf. règle 27 (1) (c) CBE) mais aussi votre avis concernant la question de l'activité inventive.

Conformément aux directives (C-III, 4.4), une revendication indépendante doit préciser clairement toutes les caractéristiques essentielles nécessaires à la définition de l'invention, ce qui signifie que chaque revendication indépendante doit indiquer toutes les caractéristiques nécessaires à la solution du problème qui est à la base de l'invention.

8. Votre attention est attirée sur le fait que la demande ne peut être modifiée d'une manière telle que son objet s'étende au-delà du contenu de la demande telle initialement déposée (art. 123(2) CBE). En conséquence il conviendrait d'indiquer, compte tenu des directives E-II, 1 et C-VI 5.4, à quel endroit des documents initiaux de la demande les nouvelles caractéristiques des revendications nouvellement formulées trouvent leur base directe et non équivoque.

## **DOCUMENT I (Etat de la technique)**

(Ce document est identique au document I de l'épreuve A)

La présente invention concerne des polymères parfaitement transparents (limpides), hautement résistants et réticulés que l'on obtient par copolymérisation (A) d'un macromère de polysiloxane linéaire ou ramifié contenant au moins deux groupes vinyle terminaux ou latéraux polymérisables et liés au polysiloxane par l'intermédiaire d'un groupe uréthane avec (B) des monomères de vinyle et, le cas échéant, des monomères de divinyle, 85 à 100 % de ces monomères étant insolubles dans l'eau. Ces polymères qui doivent évidemment être exempts d'ondes sont utilisables pour la fabrication de lentilles de contact souples ou dures, notamment dures.

Les lentilles de contact appartiennent à deux groupes que l'on désigne habituellement comme lentilles "dures" et lentilles "souples" mais qui se distinguent mieux en fonction de la manière dont elles sont posées sur l'oeil. Les lentilles dures sont appliquées de manière relativement lâche pour faciliter l'échange du fluide lacrymal entre la lentille et la cornée. Cet effet est obtenu par suite du mouvement de balançoire par lequel du fluide lacrymal est déplacé en continu par pompage de l'espace compris entre la lentille et la surface de l'oeil. Un tel échange de fluide lacrymal est la seule voie par laquelle l'oxygène si important peut être amené à la cornée chez les porteurs de lentilles courantes en polyméthacrylate de méthyle (PMMA). Les lentilles dures en PMMA sont au moins au début désagréables et irritant le porteur, étant donné que la paupière touche un bord dur lors des clignements d'yeux. Néanmoins elles sont répandues car elles peuvent être fabriquées avec une grande précision par usinage mécanique et par polissage. Ceci est particulièrement important pour la fabrication de lentilles de forme asymétrique servant à la correction de l'astigmatisme. Un avantage supplémentaire des lentilles dures réside dans le fait qu'elles peuvent facilement être maintenues propres.

Au contraire, les lentilles souples adhèrent étroitement à la cornée et sont donc plus agréables à porter. Etant donné qu'elles n'autorisent qu'un échange limité du fluide lacrymal, elles doivent posséder une perméabilité spécifique suffisamment élevée vis-à-vis de l'oxygène pour empêcher des lésions de l'oeil même dans le cas de durées de port de seulement quelques heures. Dans le cas de toutes les lentilles souples disponibles dans le commerce (p. ex., celles fabriquées à partir du méthacrylate d'hydroxyéthyle hydrophile), cette perméabilité à l'O<sub>2</sub> est fonction de leur teneur en eau. De plus, l'eau agit comme plastifiant qui confère à la lentille sa souplesse et le caractère hydrophile requis, qui permet à la lentille de nager sur la cornée au lieu d'y coller. Le fait de coller contre la cornée constitue le problème majeur des lentilles souples hydrophobes, tout comme dans le cas des lentilles connues en caoutchouc de silicone. Il est vrai que les lentilles souples hydrophiles offrent un confort de port plus élevé, mais leur précision optique est remise en question du fait que leur forme ne peut pas être élaborée avec exactitude en raison de la souplesse du matériau et en raison du fait que certaines distorsions sont inévitables par suite du gonflement par l'eau. Etant donné que les lentilles souples s'adaptent à la cornée, elles ne conviennent pas en cas d'astigmatisme. De plus, le nettoyage de lentilles souples traditionnelles exige une mise en oeuvre importante.

L'objet d'un mode de réalisation de la présente invention est constitué par une lentille contenant des silicones et dont la surface demeure en permanence hydrophile. L'objet d'un autre mode de réalisation de la présente invention est constitué par des matériaux polymères contenant des silicones dans le domaine allant de "souple" à "dur" (au sens des définitions valables pour des lentilles de contact) qui ne présentent pas les inconvénients indiqués ci-dessus.

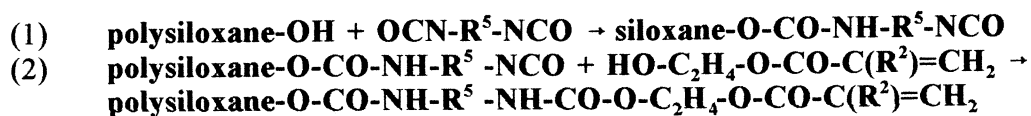
Le macromère à base de polysiloxane répond à la formule générale (1), étant entendu que les groupes  $-(R^1-X)Si(R)-O-$  et  $-[Si(R)_2-O]-$  ne doivent pas nécessairement être présents sous forme de blocs de polymère séparés, mais peuvent aussi par exemple être répartis de manière plus ou

moins statistique, p. ex., de manière uniforme, sur la molécule :



Dans cette formule, on a les significations :  $\mathbf{R}$  = méthyle, éthyle, propyle ou butyle,  $\mathbf{R^1}$  = un reste éthyléniquement insaturé, en particulier  $\mathbf{CH_2=C(R^2)-CO-O-}$ ,  $\mathbf{R^2 = H}$  ou  $\mathbf{CH_3}$ ,  
 $\mathbf{X = -R^3-O-CO-NH-R^5-NH-CO-O-R^4-}$ ,  $\mathbf{R^3}$  et  $\mathbf{R^4}$  = reste alkylène (bivalent) linéaire ou ramifié et  $\mathbf{R^5}$  un reste alkylène linéaire ou cyclique, et  $\mathbf{m \geq 2}$ ,  $\mathbf{n > 0}$  et  $\mathbf{500 \leq (m + n) \leq 1000}$ .

Les macromères de siloxane sont préparés par une réaction à deux étapes selon le schéma suivant à partir de polysiloxane contenant des groupes hydroxy libres, de diisocyanate et, p. ex., de (méth)acrylate d'hydroxyéthyle :



Comme monomères il s'agit de styrènes, d'acrylates ou méthacrylates d'alkyle en  $\mathbf{C_1}$  à  $\mathbf{C_{12}}$ , de cycloalkyle en  $\mathbf{C_6}$  à  $\mathbf{C_{12}}$  ou d'aralkyle en  $\mathbf{C_6}$  à  $\mathbf{C_{12}}$ . Les esters à chaîne plus longue sont plus adaptés pour les lentilles souples. On peut également utiliser en même temps de petites quantités de composés divinylés et des acrylates et/ou des méthacrylates d'hydroxyalkyle ou de fluoralkyle en  $\mathbf{C_2}$  à  $\mathbf{C_{10}}$ , p. ex., le méthacrylate d'hydroxyéthyle et le méthacrylate d'hexafluorisopropyle.

Les polymères ainsi préparés ont été testés de la manière suivante.

La perméabilité spécifique à l'oxygène ( $\mathbf{O_2-DK}$ ) a été déterminée par la mesure de la perméabilité à de l'oxygène dissous à  $35^\circ \text{C}$  à l'aide d'une électrode polarographique dans un environnement aqueux saturé d'air et est exprimée en unités "Barrer" :  $\mathbf{10^{-11} \text{ ml cm/(cm}^2 \text{ s mmHg)}}$   
 $(= \mathbf{7,50 \cdot 10^{-14} \text{ ml cm/(cm}^2 \text{ s Pa)})}$ . En dessous d'une valeur de 15, la perméabilité spécifique à l'oxygène ne peut plus guère être considérée comme satisfaisante.

Pour la détermination de la mouillabilité par l'eau, un échantillon en forme de feuille d'une épaisseur de 1 mm a été plongé dans de l'eau d'une température de  $36^\circ \text{C}$  et saturé avec de l'n-octane. On a ensuite fait monter une gouttelette d'n-octane le long de la face inférieure de la feuille et on a mesuré l'**angle de contact** de la gouttelette. Des valeurs élevées de cette mesure indiquent une mouillabilité élevée par l'eau (hydrophilie).

La dureté a été mesurée à l'aide d'un duromètre **Shore-D** sur des surfaces polies d'une pièce en forme de disque découpée dans la partie centrale d'un corps en polymère moulé (cf. DIN 53 505, ASTM D-2240, ISO 868).

Naturellement et comme généralement connu dans le cas des polymères, des indications quantitatives concernant des polymères et des oligomères ne fournissent que des propriétés moyennes selon une répartition statistique de Gauss.

### Exemple 1

Un réacteur susceptible d'être agité placé sous un gaz de protection a été chargé avec 30 moles de polydiméthylsiloxane ayant un degré de polymérisation de 500 et comportant trois groupes hydroxyéthyle. On a ensuite ajouté 94,5 moles d'hexandiisocyanate (un alkylènediisocyanate commercial) en même temps que 25 g de dilaurate de dibutylétain comme catalyseur. Après une agitation de cinq heures à  $50^\circ \text{C}$ , la conversion était pratiquement complète.

25 moles de ce produit intermédiaire ont été mis à réagir, sous gaz de protection à la température ambiante, avec 76 moles de méthacrylate d'hydroxyéthyle (**HEMA**) jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de groupes isocyanate (**-NCO**). Le produit obtenu constitué par du polysiloxane comportant des groupes méthacrylate présentait une pureté de plus de 99,5 %. Ce produit est appelé siloxane-macromère dans ce qui suit.

#### Exemples 2-4

Après addition de 0,2 % en poids d'initiateur "UVInit", le siloxane-macromère préparé dans l'exemple 1 a été copolymérisé avec les monomères indiqués au tableau 1 pour former des feuilles d'une épaisseur de 0,1 mm par exposition à un rayonnement UV entre des plaques de verre quartzes préalablement rendues antiadhésives. On a effectué sur ces feuilles des mesures de la perméabilité spécifique à l'oxygène. On a préparé de la même façon des feuilles d'une épaisseur de 1 mm à partir de chaque mélange de monomères pour la mesure de la mouillabilité avec de l'eau.

Des corps de forme d'un diamètre de 15 mm et d'une hauteur de 10 mm ont été polymérisés de manière analogue à l'intérieur de moules cylindriques en polypropylène. Les corps de forme cylindriques ont ensuite été coupés en deux et polis sur les surfaces de section en vue de la mesure de la dureté.

Les résultats sont réunis dans le tableau 1 suivant :

| Ex. | Comonomères (% en poids, macromère de siloxane pour faire un total de 100 %) | Aspect  | O <sub>2</sub> -DK | Angle de contact | dureté Shore-D |
|-----|------------------------------------------------------------------------------|---------|--------------------|------------------|----------------|
| 2   | MMA (64) HEMA (4)                                                            | limpide | 29                 | 96°              | 68             |
| 3   | CHMA (66) HEMA (4)                                                           | limpide | 28                 | 94°              | 66             |
| 4   | MMA (60) FPMA (4) HEMA (4)                                                   | limpide | 32                 | 100°             | 64             |
| 5   | MMA (50) NPDA (16) HEMA (4)                                                  | limpide | 28                 | 90°              | 68             |
| 6   | CHMA (50) NPDA (16) HEMA (4)                                                 | limpide | 27.5               | 88°              | 67             |
| 7   | MMA (72) HEMA (4)                                                            | limpide | 17                 | 98°              | 76             |
| 8   | MMA (86) HEMA (4)                                                            | limpide | 7.8                | 103°             | 80             |

MMA = méthacrylate de méthyle

CHMA = méthacrylate de cyclohexyle

FPMA = méthacrylate d'hexafluoroisopropyle

HEMA = méthacrylate de 2-hydroxyéthyle

NPDA = diacrylate de néopentylglycol

## DOCUMENT II (Etat de la technique)

Lors du conditionnement de liquides l'homme du métier est très souvent confronté au problème d'une résistance insuffisante des récipients à la rupture. Par conséquent de nombreux efforts ont déjà été entrepris pour résoudre ce problème.

Pour de tels conditionnements de haute qualité, très tôt déjà, des polymères acryliques ont été utilisés ; ceux-ci ont une apparence qui est également très plaisante. Cependant, la résistance à la rupture n'était pas suffisante pour répondre à tous les besoins. C'est pour cette raison que, depuis quelque temps, il a été essayé d'améliorer ces propriétés par modification des polymères.

Ce but peut être atteint par des conditionnements selon l'invention qui sont constitués de polymères possédant une résistance très élevée à la rupture grâce à leur réticulation et à leur dureté. Tout comme les conditionnements connus en polymères acryliques, ceux conformes à l'invention ont une apparence très plaisante, ce qui leur confère un avantage supplémentaire de par l'attrait visuel pour l'exposition dans des surfaces de vente.

L'invention a pour objet des récipients pour liquides, p. ex. flacons ou bouteilles fabriqués à partir de copolymères réticulés et limpides (transparents) d'un degré de réticulation tel qu'il empêche un gonflement des polymères par l'eau de plus de 5 % en volume et d'une dureté Shore-D de 70 à 85. Les polymères sont obtenus par copolymérisation de mélanges homogènes de monomères. Le mélange est composé de :

- (a) 40 à 80 % en poids de méthacrylates d'alkyle dont les groupes alkyle possèdent de 1 à 5 atomes de carbone,
  - (b) 2 à 10 % en poids de méthacrylates d'hydroxyalkyle, et
  - (c) 15 à 40 % en poids de silicones selon la formule
- $$\text{R}_3\text{Si-O}-(\text{R}^1\text{-X})\text{Si}(\text{R})\text{-O}]_m\text{-}[\text{Si}(\text{R})_2\text{-O}]_n\text{-SiR}_3 \quad (1)$$

Dans la formule (1), les symboles ont les significations suivantes :  $1 \leq m \leq 3$ ,  $(m + n) \leq 150$ ,  $\text{R}$  = indépendamment les uns des autres : des alkyles en  $\text{C}_1$  à  $\text{C}_4$ ,  $\text{R}^1 = \text{CH}_2=\text{C}(\text{R}^2)\text{-CO-O-}$ ,  $\text{R}^2 = \text{H}$  ou  $\text{CH}_3$ ,  $\text{X} = \text{-R}^3\text{-O-CO-NH-R}^5\text{-NH-CO-O-R}^4\text{-}$ ,  $\text{R}^3$  et  $\text{R}^4 = \text{-(CH}_2)_t\text{-}$ ,  $t = 2$  à  $4$ ,  $\text{R}^5 = \text{-(CH}_2)_v\text{-}$ ,  $v = 2$  à  $6$ . De préférence,  $m = 1$ .

Le mélange de monomères contient de plus, de 0,001 à 0,5 % en poids par rapport aux monomères, d'un initiateur soluble dans des monomères. En tant qu'initiateurs préférés, tous les composés peroxydiques solubles dans les monomères entrent en ligne de compte. Le mélange limpide des monomères peut être polymérisé tel quel ou en solution. Comme l'oxygène inhibe la polymérisation, on doit agir à l'abri de l'air. On y arrive le plus aisément en mettant, avant la polymérisation, le mélange de monomères mélangé à l'initiateur plusieurs fois sous vide et en le rinçant ensuite avec un gaz inerte, p. ex., de l'azote. Cette procédure empêche aussi la formation de bulles de gaz dans le polymère.

Pour améliorer les propriétés des produits selon l'invention, notamment leur résistance aux chutes, on ajoute de préférence au polymère juste avant la suite du traitement, un agent réticulant qui réticule les groupes hydroxy libres des polymères au moment de la production des récipients par exemple par moulage par injection. La quantité d'agent réticulant est maintenue de préférence un peu en dessous de la quantité stoechiométrique. Grâce à cette façon de faire, la surface conserve, en raison des groupes hydroxy libres résiduels, un certain caractère hydrophile et permet par conséquent un écoulement facile, notamment de liquides aqueux. On évite ainsi la formation de gouttes peu esthétiques.

Comme agent réticulant, on peut utiliser en particulier des diisocyanates d'alkylène à courte chaîne. L'agent réticulant préféré est le diisocyanate d'hexane (**HDI**). Principalement à cause de la nature de l'agent réticulant, il convient de veiller à l'absence de toute trace d'humidité pendant la production des récipients.

#### Exemple

Un oligomère de siloxane composé d'unités de diméthylsiloxane ayant un degré de polymérisation de 100 et qui présente dans la molécule trois groupes méthacrylate (**R<sup>1</sup>-X-**) polymérisables a été préparé à partir du siloxane correspondant comportant trois groupes hydroxyéthyles en utilisant du **HDI** et du méthacrylate d'hydroxyéthyle (**HEMA**).

Un mélange de monomères a été préparé à partir de 60 parties en poids de méthacrylate de méthyle, de 36 parties en poids du composant de siloxane décrit ci-dessus, de 4 parties en poids de **HEMA** et de 0,03 parties en poids de peroxyde de benzoyle puis polymérisé à 55° C à l'abri de l'air et en l'absence d'humidité. Deux parties en poids de **HDI** ont ensuite été incorporées au polymère, auquel on a ensuite donné la forme de bouteilles dans un appareil de moulage par injection. Pendant ce traitement, le polymère s'est réticulé. La résistance au bris de ces bouteilles était sensiblement plus élevée que celle de bouteilles ayant été produites selon le même procédé mais auxquelles on n'a pas ajouté de **HDI**. La hauteur de chute nécessaire au bris de bouteilles à moitié remplies était en général de l'ordre de 120 à 150 cm pour les polymères réticulés contre environ 90 à 100 cm pour les bouteilles préparées à partir de polymères non réticulés.

Les bouteilles réticulées présentaient également un aspect visuel agréable et sont bien mouillées par des solutions aqueuses de sorte que lors du déversement le liquide s'écoulait régulièrement et sans formation de gouttes ou d'ondes.

Ces avantages ont également été constatés sur des bouteilles préparées à partir des mêmes composants monomères, mais dont la proportion en poids était de 70:25:5.

### DOCUMENT III (Etat de la technique)

L'invention a pour objet de nouvelles lentilles de contact constituées de copolymères limpides et exempts d'ondes, susceptibles d'être obtenues par copolymérisation d'un mélange contenant de 0,001 à 0,5 % en poids (par rapport aux monomères) d'un initiateur et consistant en :

- (a) 45 à 60 % en poids de méthacrylate d'alkyle
- (b) 4 à 10 % en poids d'acrylate et/ou de méthacrylate d'hydroxyéthyle
- (c) 25 à 40 % en poids de silicones de formule (1)  
$$\text{R}_3\text{Si-O}-(\text{R}^1\text{-X})\text{Si(R)-O}-[\text{Si(R)}_2\text{-O}]_n\text{-SiR}_3$$

dans laquelle **R** = est indépendamment les uns des autres un radical alkyle en  $\text{C}_1$  à  $\text{C}_8$ ,  
 $\text{R}^1 = \text{CH}_2=\text{C(R}^2\text{)-CO-O-}$  étant entendu que l'unité  $-(\text{R}^1\text{-X})\text{Si(R)-O}-$  peut se trouver à un endroit quelconque de la chaîne de polysiloxane,  $100 \leq n \leq 150$ ,  $\text{R}^2 = \text{H}$  ou  $\text{CH}_3$ ,  
 $\text{X} = \text{-R}^3\text{-O-CO-NH-R}^5\text{-NH-CO-O-R}^4\text{-}$ ,  $\text{R}^3$  et  $\text{R}^4$  = l'un et l'autre un reste alkylène linéaire ou ramifié, et  $\text{R}^5$  = un reste de butane, pentane et/ou hexane bivalent
- (d) 1 - 10 % en poids de composés comportant au moins deux groupes éthyléniquement insaturés copolymérisables.

Par la sélection des esters alkyles de l'acide méthacrylique, les lentilles de contact selon l'invention peuvent être produites avec une consistance allant de souple à dure. Plus le reste alkyle est court, plus la lentille devient dure. Par conséquent on utilise pour les lentilles souples qui sont préférées, des méthacrylates à chaîne longue. A titre d'exemple, il y a les méthacrylates de butyle, d'octyle et de dodécyle. Pour les lentilles plus dures ou dures qui sont moins préférées, on utilise en particulier le méthacrylate de méthyle.

L'hydrophilie de la lentille peut être réglée par le rapport entre les composants (b) et (c). Alors que (c) réduit l'hydrophilie des lentilles, (b) augmente cette propriété grâce à la présence de son groupe hydroxy et accroît en même temps la prise d'eau par la lentille. Ceci accroît en plus la perméabilité spécifique à l'oxygène et complète en ce faisant l'action du composant (c). Les composants (c) et (d) augmentent également la ténacité ou résistance à la rupture des lentilles. Les duretés Shore-D peuvent être réglées, p. ex., par la sélection de (a) et par la quantité d'agent réticulant (d) dans le domaine de 50 à 80. Par augmentation de la teneur en (d) on peut également augmenter le degré de réticulation à un point tel que le gonflement des polymères par l'eau est réduit à une valeur inférieure à 10 % en volume.

De cette façon il est possible de régler presque à volonté les propriétés des lentilles de contact selon l'invention.

La polymérisation est réalisée de préférence à l'intérieur d'un moule à cavité en forme de lentille et les ébauches ainsi obtenues sont usinées et les surfaces polies après leur extraction du moule afin d'obtenir la forme lenticulaire optiquement exacte requise. Les lentilles souples sont ensuite conservées dans de l'eau.

Une lentille de contact constituée de 55 % en poids de méthacrylate de n-butyle, de 8 % en poids d'acrylate d'hydroxyéthyle, de 32 % en poids d'un silicone selon la formule (1) dans laquelle  $\text{R} = \text{R}^2 = \text{CH}_3$ ,  $\text{R}^3 = \text{R}^4 = \text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{R}^5 = (\text{CH}_2)_6$  avec  $n = 100$ , et le groupe polymérisable étant situé à peu près au milieu de la chaîne de siloxane, et de 5 % en poids de diméthacrylate de néopentylglycol présentait les caractéristiques suivantes : dureté Shore-D (ISO 868) : 57, **O<sub>2</sub>-DK** (suivant **document I**) : 30, **gonflement** (après 48 h dans de l'eau distillée à 20° C) : 21 % en volume. Après ce traitement aqueux, la lentille était recouverte par un film d'eau continu.



## LETTRE DU CLIENT

Mesdames, messieurs,

Nous vous remercions pour l'envoi de la notification officielle. Nous sommes au regret de devoir constater que l'examineur n'a visiblement pas du tout bien compris l'invention et soulève des objections qui n'ont rien à voir avec nos produits.

Il est vrai que les polymères du **document II** sont similaires mais ne concernent que des matériaux d'emballage. Il en est de même pour le **document III** qui à notre avis n'est pas pertinent ; en effet, ce document ne fait que décrire une lentille de contact souple, fortement gonflée.

De plus, les deux documents ne contiennent aucune information sur la présence de méthacrylate de fluoralkyle dans le matériau de la lentille.

Concernant un autre aspect, vous trouverez ci-après quelques essais qui confirment l'importance des groupes phényle dans le composant (**A'**), fait qui ne ressort d'aucun document. En effet, il est possible de faire varier l'indice de réfraction à l'aide de ces groupes. Grâce à des indices de réfraction plus élevés on peut évidemment faire des économies d'épaisseur de la lentille. Nous vous prions de vérifier si ces résultats peuvent être soumis à l'examineur pour le convaincre de notre invention : les exemples 2 et 8 ont été répétés en remplaçant dans le siloxane réactif une partie des groupes méthyle par du phényle. Les indices de réfraction plus élevés résultent du tableau. Nous avons également indiqué la mouillabilité, qui est cependant inférieure. Les indices de réfraction  $n_D^{25}$  dans les exemples 2 et 8 étaient respectivement de 1,485 et de 1,490.

| Comparaison avec l'exemple | 2     |       | 8     |       |
|----------------------------|-------|-------|-------|-------|
| rapport phényle/méthyle    | 1:15  | 1:2.5 | 1:15  | 1:2.5 |
| indice de réfraction       | 1,498 | 1,505 | 1,500 | 1,511 |
| angle de contact           | 104°  | 102°  | 102°  | 100°  |

Meilleures salutations

Perspicace S. à r. l.