

Brevet **85822**  
du 27 mars 1985  
Titre délivré : **- 6007, 1985**

GRAND-DUCHÉ DE LUXEMBOURG



Monsieur le Ministre  
de l'Économie et des Classes Moyennes  
Service de la Propriété Intellectuelle  
LUXEMBOURG

# Demande de Brevet d'Invention

## I. Requête

Etablissement d'utilité publique de droit belge dit: (1)  
"Centre d'Etude de l'Energie nucléaire", "C.E.N.", Avenue  
Eugène Plasky 144, à B-1040 BRUXELLES, Belgique, représenté (2)  
par Monsieur Jacques de Muyser, agissant en qualité de mandataire  
dépose(nt) ce vingt-sept mars 1985 quatre-vingt-cinq (3)  
à 15 heures, au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, à Luxembourg :  
1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant : (4)  
"Procédé de production d'une structure poreuse comprenant  
une matière organique dispersée dans un liant". (4)

2. la délégation de pouvoir, datée de \_\_\_\_\_ le \_\_\_\_\_  
3. la description en langue française de l'invention en deux exemplaires;  
4. // planches de dessin, en deux exemplaires;  
5. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg,  
le 27 mars 1985

déclare(nt) en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'(es) inventeur(s) est (sont) : (5)

~~révendique(nt) pour la susdite demande de brevet la propriété intellectuelle de~~  
(6) \_\_\_\_\_ déposée(s) en (7) \_\_\_\_\_  
le \_\_\_\_\_ (8)

au nom de domicile (9)  
élit(élient) pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg  
35, bld. Royal (10)

sollicite(nt) la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les  
annexes susmentionnées, — avec ajournement de cette délivrance à 18 mois. (11)  
De mandataire

## II. Procès-verbal de Dépôt

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Économie et des  
Classes Moyennes, Service de la Propriété Intellectuelle à Luxembourg, en date du :

27 \_\_\_\_\_ 1985

à 15 heures



Pr. le Ministre  
de l'Économie et des Classes Moyennes,  
p. d.

A 68007

(1) Nom, prénom, firme, adresse — (2) s'il a lieu «représenté par... agissant en qualité de mandataire — (3) date du dépôt  
en toutes lettres — (4) titre de l'invention — (5) noms et adresses — (6) brevet, certificat d'addition, modèle d'utilité — (7)  
pays — (8) date — (9) déposant originaire — (10) adresse — (11) 0 à 12 du 1er mois

Mémoire Descriptif  
déposé à l'appui d'une demande de  
**BREVET D'INVENTION**  
au  
**Luxembourg**

formée par: "Centre d'Etude de l'Energie nucléaire", "C.E.N."

pour: "Procédé de production d'une structure poreuse  
comprenant une matière organique dispersée dans  
un liant".

La présente invention est relative à un procédé de production d'une structure poreuse comprenant une matière organique dispersée dans un liant.

5 Il existe plusieurs formes de réalisation de structures poreuses comprenant une matière organique dispersée dans un liant. De telles structures ont de nombreuses applications notamment dans des procédés et analyses chimiques et plus particulièrement biochimiques , dans des tests biologiques, la pharmacologie et l'industrie  
10 alimentaire.

Les procédés connus pour la production de ces structures poreuses comprennent généralement une phase de traitement à une température dépassant sensiblement la température ambiante et destructive de la matière  
15 organique ou de la liaison entre cette dernière et son support dans la structure.

Il en suit que la fixation de la matière organique sur le support est nécessairement la phase terminale de la production; la fixation est alors plus  
20 difficile à réaliser et la régularité de la distribution désirée de la matière organique à travers la structure en souffre. Surtout si la matière organique est à fixer sur un support pulvérulent à incorporer dans le liant, la fixation de la matière sur le support est plus facilement  
25 contrôlée si elle se réalise sur le support pulvérulent non encore incorporé dans le liant. Le couplage entre le support et la matière organique étant de préférence à réaliser sous forme d'une liaison covalente, il est à éviter que celle-ci doive se produire avec le support  
30 déjà incorporé.

US-A-3.766.013 qui décrit des procédés de production d'une structure poreuse comprenant un liant suivant lesquels le couplage de la matière organique,

en l'occurrence une enzyme, se fait sur un support organique déjà incorporé dans un liant, en l'occurrence du polytetrafluoroéthylène, fait remarquer que le couplage peut également être réalisé après fibrillation du liant, 5 donc avec un support déjà incorporé, si l'enzyme supporte la haute température, mais en pratique les enzymes, et en général les matières biologiques à incorporer, sont détruites aux températures requises pour les autres phases du procédé de production.

10 L'invention a essentiellement pour but de procurer un procédé pouvant être réalisé sous des conditions telles que la matière organique, donc éventuellement la matière organique déjà fixée sur un support, puisse être incorporée dans le liant sans que cette 15 matière et/ou sa fixation sur le support ne soient détruites.

A cet effet, le procédé suivant l'invention comprend la succession des opérations suivantes :

- on mélange ensemble la matière organique se présentant 20 sous forme d'une poudre et le liant pulvérulent à l'état sec pour former un mélange sec,
  - on soumet ce mélange sec à un traitement d'agglomération pour former des agglomérats,
  - on soumet les agglomérats formés à un traitement de 25 broyage pour former des agglomérats broyés
- et
- on presse ensemble les agglomérats broyés pour former un comprimé.

30 De préférence, on effectue toutes les opérations à température ambiante.

Dans une forme de réalisation avantageuse de l'invention on soumet le comprimé à des laminages jusqu'à obtention d'un film.

Dans une forme de réalisation particulière de l'invention, on fixe la matière organique sur un support pulvérulent et on mélange ensemble le support pulvérulent chargé de la matière organique et le liant pulvérulent à l'état sec pour former un mélange sec.

Il est à remarquer qu'un procédé comportant une succession d'opérations comparable à celle suivant l'invention est connu pour la production d'une couche d'électrode pour une pile à combustible. Suivant ce procédé connu de EU-A-43 632 on mélange une poudre fine inorganique conductrice d'électricité et le liant. Il a été constaté suivant l'invention que de façon étonnante une succession comparable d'opérations permet également d'incorporer une matière organique dans un liant en vue de la production d'une structure poreuse destinée à des applications biologiques et analogues.

D'autres détails et particularités de l'invention ressortiront de la description de plusieurs formes de réalisation d'un procédé de production d'une structure poreuse comportant une matière organique dispersée dans un liant suivant l'invention donnée ci-après à titre d'exemple non limitatif.

La structure à produire par le procédé suivant l'invention est en général une structure sous forme d'un film ou d'un disque donc s'étendant essentiellement en deux dimensions, mais peut également être une structure tridimensionnelle. La structure poreuse est constituée par la dispersion de la matière organique ou d'un support pulvérulent chargé de cette matière organique au sein d'une matrice poreuse constituée par le liant. Le support susdit peut également être microporeux.

La matière organique est par exemple une protéine et plus particulièrement une enzyme. Des exemples de matières

organiques se retrouvent dans US-A-3.766.013 incorporé ici par voie de référence. Un autre exemple d'une matière organique pouvant être utilisée dans le procédé suivant l'invention est la cellulose.

5           La matière organique, notamment l'enzyme, peut être couplée à un support pulvérulent. Des exemples de tels supports se retrouvent dans US-A-3.766.013. Le couplage entre le support pulvérulent et la matière organique est réalisé avant que le support ne soit incorporé dans la structure par le  
10 procédé suivant l'invention. Les particularités de la réaction de couplage ne font pas partie de la présente demande de brevet.

          Il est cependant à remarquer que le couplage de la matière organique au support est de préférence une liaison  
15 covalente et que la réaction de couplage connue comme telle est une réaction difficile et complexe. Il est important suivant l'invention que cette réaction soit réalisée sur la matière organique et le support non incorporé dans la structure. Le dosage est alors plus facilement et plus précieusement contrôlé.  
20

          Le liant doit se prêter à la formation d'une matrice poreuse. Il peut notamment être choisi parmi le polyéthylène, le polypropylène, le polychlorure de vinyle, les polyfluorures de carbone et le polytétrafluoroéthylène.

25           Si on désire limiter ou éviter le caractère hydrophobe du liant, la poudre constituant le liant peut être hydrophilisée préalablement aux autres opérations du procédé. Cette hydrophilisation peut consister dans un traitement par un liquide hydrophilisant connu tels que les liquides mentionnés dans  
30 US-A-4.252.878 incorporé ici par voie de référence.

          Le procédé proprement dit consiste en une succession des opérations suivantes.

Dans une première opération on mélange ensemble la matière organique se présentant sous forme d'une poudre ou le support pulvérulent chargé de la matière organique et le liant pulvérulent à l'état sec pour former un mélange sec.

5 Les pourcentages des constituants à mélanger dépendent de la nature du liant et de la nature du support et/ou de la matière organique, mais la quantité de liant en poids par rapport à l'ensemble du mélange demeure normalement inférieure à 30 %. Le mélange est réalisé dans n'importe quel mélangeur  
10 de poudre, par exemple dans un mélangeur à billes dans lequel les billes ont une vitesse de l'ordre de 0,1 à 1 m/sec par rapport à la cuve. Dans une seconde opération on soumet le mélange sec à un traitement d'agglomération pour former des agglomérats. Ceci est réalisé dans un broyeur à billes dans  
15 lequel les billes ont une vitesse sensiblement supérieure à celle appliquée pour former le mélange, par exemple une vitesse de l'ordre de 4 à 6 m/sec par rapport à la cuve.

Ce traitement d'agglomération peut avoir une durée de plusieurs heures. Après cette opération le broyeur comprend  
20 des agglomérats se présentant sous la forme d'une peau et ayant une surface de l'ordre de quelques  $\text{cm}^2$  à quelques centaines de  $\text{cm}^2$ .

Dans une troisième opération les agglomérats sont soumis à un traitement de broyage pour former des agglomérats  
25 broyés, par exemple dans un mixer ou dans un moulin du genre moulin à café.

Dans une quatrième opération les agglomérats broyés ou leur fraction utile, par exemple la fraction traversant un crible de 0,5 mm, sont comprimés dans une presse jusqu'à  
30 une épaisseur de quelques centimètres.

Dans une cinquième opération le comprimé est soumis à des laminages jusqu'à ce que son épaisseur soit réduite dans un rapport de 1/10 à 1/50. Les pas de laminages qui se succèdent sont effectués sur un comprimé déplacé de 90°.

5            Toutes les opérations se font à température ambiante et de toute façon à une température inférieure à 340° K.

Exemple 1.

50 grammes de poudre de polytétrafluoroéthylène (vendu dans le commerce sous la marque Teflon 10 N) et  
10 50 grammes de poudre de cellulose sont introduits dans un broyeur à billes de laboratoire.

4 billes en acier inoxydable d'un diamètre de 30 mm sont également introduites dans le broyeur.

Après 2 heures de rotation le broyeur est ouvert;  
15 ses parois sont recouvertes d'une "peau" formée par la cellulose et le polytétrafluoroéthylène.

La peau est prélevée et broyée dans un mixer de cuisine.

20 20 grammes sont prélevés et introduits dans une presse au moyen de laquelle on forme un comprimé de 3,5 x 70 x 70 mm.

Le comprimé est laminé à froid jusqu'à l'obtention d'une feuille de 0,2 mm d'épaisseur et de 510 x 135 mm<sup>2</sup> de surface.

25            Cette feuille présente 9,5 mg.cm<sup>-2</sup> de polytétrafluoroéthylène et de cellulose .

Après trempage dans l'eau on constate qu'après 12 heures la feuille a adsorbé 20 % de son volume en eau.

Exemple 2.

30            On travaille suivant l'exemple 1 mais la poudre de polytétrafluoroéthylène est hydrophilisée avant son introduction dans le broyeur.

A cet effet la poudre de polytétrafluoroéthylène est plongée dans une solution à 40 % en poids du produit

connu dans le commerce sous la dénomination "Zonyl FSN" et y est maintenue pendant cinq jours.

Lorsqu'un échantillon de la feuille réalisée suivant ce second exemple est plongé dans l'eau on  
5 constate qu'après 30 secondes la feuille a adsorbé 50 % de son volume en eau.

L'invention n'est nullement limitée aux formes de réalisation décrites ci-avant et dans le cadre de la présente demande de brevet de nombreuses modifications  
10 peuvent y être apportées.

REVENDEICATIONS

1. Procédé de production d'une structure poreuse comprenant une matière organique dispersée dans un liant, caractérisé par la succession des opérations suivantes :

- 5 - on mélange ensemble la matière organique se présentant sous forme d'une poudre et le liant pulvérulent à l'état sec pour former un mélange sec,  
- on soumet ce mélange sec à un traitement d'agglomération pour former des agglomérats,  
10 - on soumet les agglomérats formés à un traitement de broyage pour former des agglomérats broyés  
et  
- on presse ensemble les agglomérats broyés pour former un comprimé.

15 2. Procédé suivant la revendication précédente, caractérisé en ce qu'on effectue toutes les opérations à une température inférieure à 340° K.

20 3. Procédé suivant la revendication précédente, caractérisé en ce qu'on effectue toutes les opérations à température ambiante.

4. Procédé suivant l'une ou l'autre des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on soumet le comprimé à des laminages jusqu'à obtention d'un film.

25 5. Procédé suivant l'une ou l'autre des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on fixe la matière organique sur un support pulvérulent et qu'on mélange ensemble le support pulvérulent chargé de la matière organique et le liant pulvérulent à l'état  
30 sec pour former un mélange sec.

6. Procédé suivant la revendication précédente, caractérisé en ce qu'on fixe la matière organique sur le support pulvérulent par liaison covalente.

7. Procédé suivant l'une ou l'autre des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on utilise comme porteur de la matière organique de la cellulose.

5 8. Procédé suivant l'une ou l'autre des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on utilise comme liant du polytetrafluoroéthylène.

10 9. Procédé suivant l'une ou l'autre des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on hydrophilise le liant pulvérulent et qu'on mélange ensemble la matière organique sous forme d'une poudre et le liant pulvérulent hydrophilisé.

15 10. Procédé suivant l'une ou l'autre des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'on utilise comme matière organique une matière biologique-ment active.

11. Procédé suivant la revendication précédente, caractérisé en ce qu'on utilise comme matière biologiquement active une enzyme.