



NUMERO DE PUBLICATION : 1003510A5

NUMERO DE DEPOT : 8901081

Classif. Internat.: A01N C07F C08G

MINISTERE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

Date de délivrance : 07 Avril 1992

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d' invention, notamment l' article 22;

Vu l' arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d' invention, notamment l' article 28;

Vu le procès verbal dressé le 09 Octobre 1989 à 14h15
à l' Office de la Propriété Industrielle

ARRETE:

ARTICLE 1.- Il est délivré à : FABRICOM AIR CONDITIONING S.A.
rue du Monténégro 138 à 144, 1060 BRUXELLES(BELGIQUE)

représenté(e)(s) par : VANDERPERRE Robert, BUREAU VANDER HAEGHEN, Rue
Colonel Bourg 108A,- B 1040 BRUXELLES.

un brevet d' invention d' une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : COMPOSITION DESINFECTANTE ET PROCEDE DE DESINFECTION.

INVENTEUR(S) : Legros Alain, rue Docteur Maître 11, 6120 Nalinnes (BE)

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l' invention, sans garantie du mérite de l' invention ou de l' exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeur(s).

Bruxelles, le 07 Avril 1992
PAR DELEGATION SPECIALE :

WUYTS L
Directeur

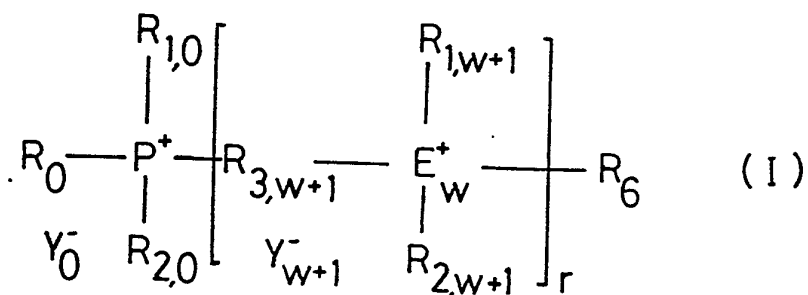
COMPOSITION DESINFECTANTE ET PROCEDE DE DESINFECTION

La présente invention est relative à une composition destinée à la désinfection de liquides et/ou surfaces ou à la conservation d'aliments ou boissons.

La composition suivant l'invention est essentiellement caractérisée en ce qu'elle contient au moins un composé de phosphonium quaternaire répondant à la formule suivante :

10

15



20

dans laquelle

r est un nombre entier éventuellement égal à zéro

w est un nombre entier compris entre 0 et r

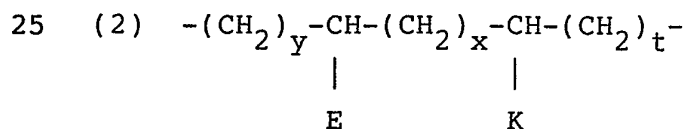
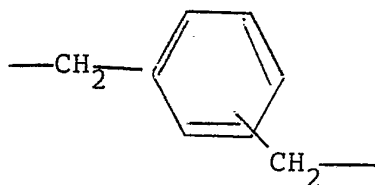
25

R_0 et R_6 qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone

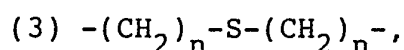
- $R_{1,0}$, $R_{2,0}$, $R_{1,g+1}$ et $R_{2,g+1}$ pour g compris entre 0 et r désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement hydroxyle, $R_{1,g+1}$ et $R_{2,g+1}$ pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone, $R_{1,g+1}$ et $R_{2,g+1}$ pouvant être reliés respectivement à $R_{1,g+2}$ et/ou $R_{1,g}$ et à $R_{2,g+2}$ et/ou $R_{2,g}$,
- 10 E_{w+1} étant choisi pour w compris entre 0 et r parmi N et P
- $R_{3,w+1}$ pour w compris entre 0 et r désigne un groupe hydrocarboné éventuellement insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe de formule :

(1) o-, m- ou p-xylylidène de formule :

20

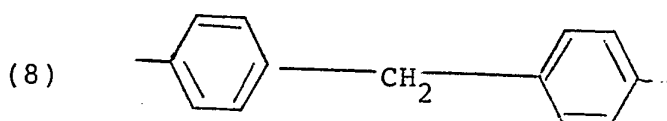


- où x , y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de $x + y + t$ est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone ;

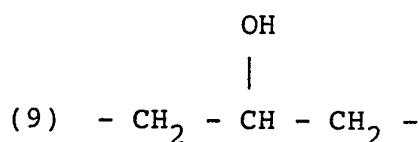


- (4) $-(CH_2)_n-O-(CH_2)_n-$,
 (5) $-(CH_2)_n-S-S-(CH_2)_n-$,
 (6) $-(CH_2)_n-SO-(CH_2)_n-$,
 (7) $-(CH_2)_n-SO_2-(CH_2)_n-$,

5



10 où n est égal à 1, 2 ou 3



15

et

20 y_o^- et y_{w+1}^- désignent un anion de préférence, un halogène.

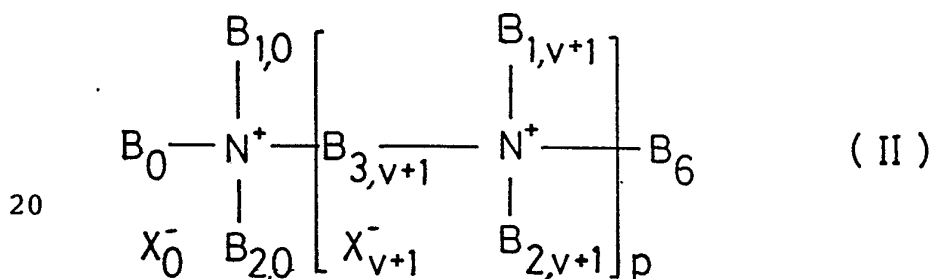
On a remarqué que ces compositions permettaient d'obtenir des résultats de destructions de microorganismes ou bactéries supérieurs à ceux obtenus 25 en utilisant des composés d'ammonium quaternaire.

On a en particulier remarqué que l'utilisation d'une composition suivant l'invention en présence d'un ion d'un métal choisi parmi le fer, le 30 cuivre, l'argent, le zinc ou un mélange de tels ions permettait une destruction rapide et complète de bactéries, telles que des bactéries contenues dans des eaux de piscine. Une telle destruction est possible même si de très faibles quantités de la composition 35 suivant l'invention sont utilisées.

On a également remarqué que le traitement d'eaux de piscine par des compositions d'ammonium quaternaire telles que celles décrites dans la demande PCT/BE 86/00032 (US 07/073796) de la demanderesse 5 pouvait être encore améliorée en ajoutant à ces compositions un composé de phosphonium quaternaire de formule I.

Dans une forme de réalisation, la 10 composition suivant l'invention contient dès lors un composé ou des composés de phosphonium quaternaire de formule I et un ou des composés d'ammonium quaternaire de formule II suivante :

15



25

dans laquelle

p est un nombre entier éventuellement égal à 0

v est un nombre entier compris entre 0 et p

30 B_0 et B_6 qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone

$B_{1,0}, B_{2,0}, B_{1,v+1}$ et $B_{2,v+1}$ pour v compris entre 0 et p désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement

5 hydroxyle, $B_{1,0}, B_{2,0}, B_{1,v}$ et $B_{2,v}$ pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone, $B_{1,v+1}$ et/ou $B_{2,v+1}$ pouvant être reliés respectivement à $B_{1,v+2}$ et/ou $B_{1,v}$ et à $B_{2,v+2}$ et/ou $B_{2,v}$

10

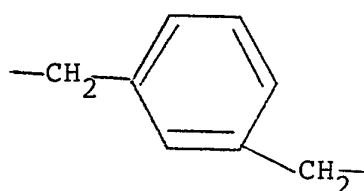
X_O^- et X_{v+1}^- désignent un anion

$B_{3,v+1}$ pour v compris entre 0 et p désigne un groupe

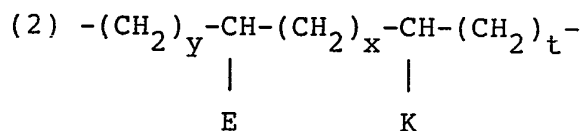
15 hydrocarboné éventuellement insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe de formule

(1) o-, m- ou p-xylylidène de formule :

20

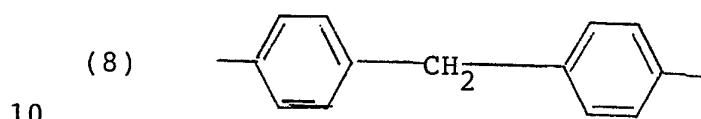


25



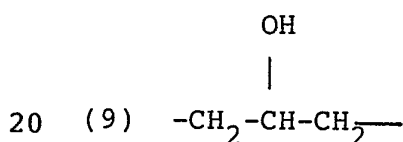
30 où x, y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de $x + y + t$ est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone ;

- (3) $-(\text{CH}_2)_n-\text{S}-(\text{CH}_2)_n-$,
 (4) $-(\text{CH}_2)_n-\text{O}-(\text{CH}_2)_n-$,
 (5) $-(\text{CH}_2)_n-\text{S}-\text{S}-(\text{CH}_2)_n-$,
 (6) $-(\text{CH}_2)_n-\text{SO}-(\text{CH}_2)_n-$,
 5 (7) $-(\text{CH}_2)_n-\text{SO}_2-(\text{CH}_2)_n-$,



où n est égal à 1, 2 ou 3

15



et

25 X_0^- et X_{v+1}^- désignent un anion, de préférence, un atome d'halogène.

Selon une particularité des compositions suivant l'invention, l'anion est de préférence un atome de chlore ou de brome.

30

Selon une autre particularité des compositions suivant l'invention, le poids moléculaire du composé d'ammonium quaternaire comprenant éventuellement un ou plusieurs phosphoniums quaternaires
 35 est avantageusement supérieur à 1000. Ce poids

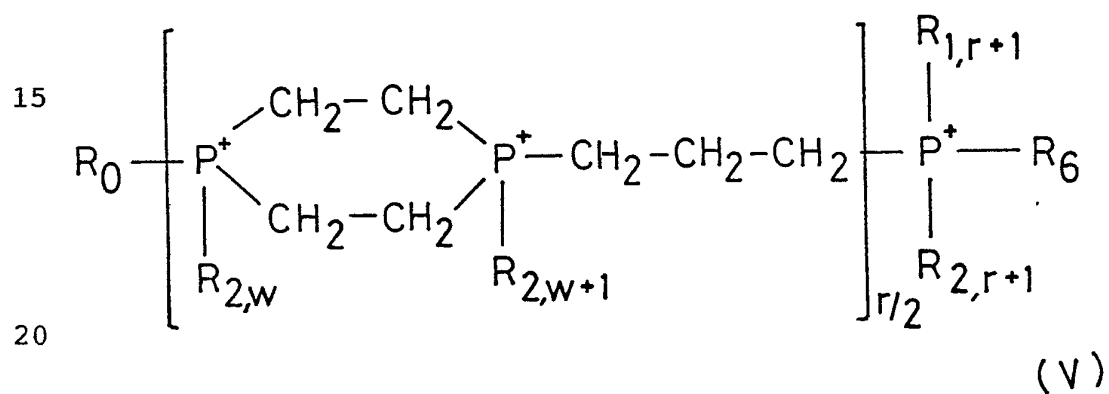
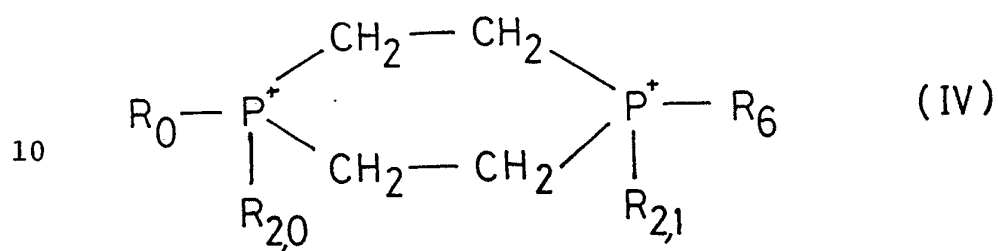
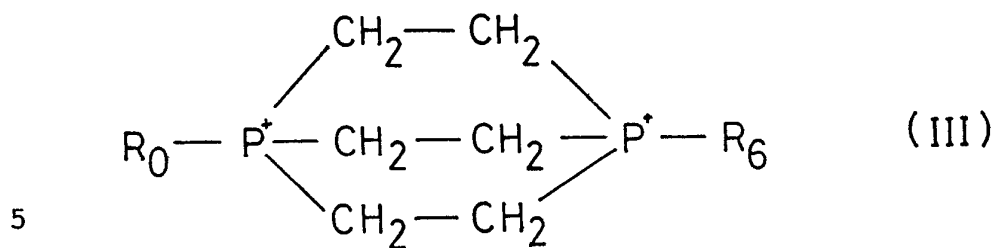
moléculaire peut être compris entre 1000 et 100 000 mais est, de préférence, compris entre 1000 et 5000.

Dans les compositions suivant l'invention,
5 R_0 , R_6 et/ou B_0 , B_6 contiennent avantageusement de 16 à 22 atomes de carbone et, de préférence 16 atomes de carbone.

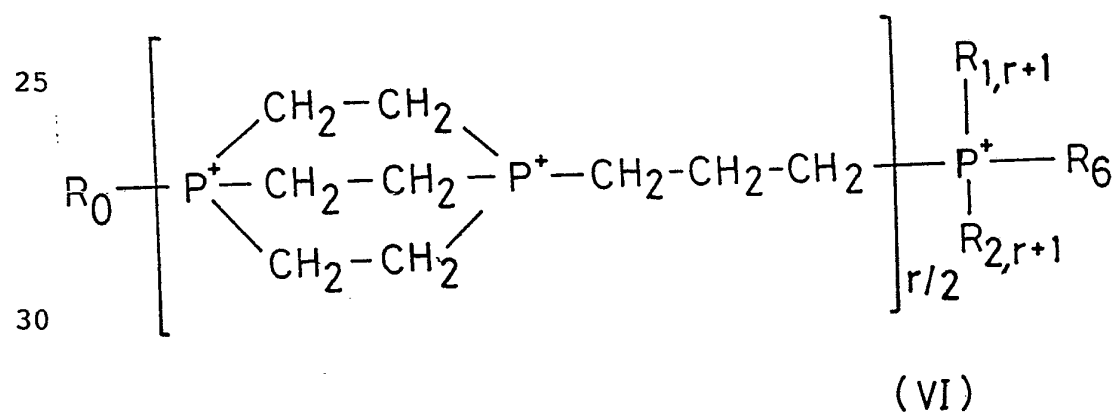
Des exemples de radicaux B_0 , B_6 , R_0 , R_6 sont
10 les radicaux suivants : méthyle, éthyle, propyle, isopropyle, méthyle propyle, diméthyle propyle, pentyle, hexyle, octyle, décyle, diméthyle décyle, hexadécyle, octadécyle, nonadécyle, docosyle, ces radicaux portant éventuellement un ou plusieurs groupements carboxy,
15 hydroxy, méthoxy, éthoxy, butoxy, etc. et un ou plusieurs atomes d'halogène (chlore, brome...),

Dans une forme de réalisation particulière de composition suivant l'invention, pour au moins un k
20 compris entre 0 et r, $R_{1,k}$ et $R_{1,k+1}$ sont reliés entre eux et/ou $R_{2,k}$ et $R_{2,k+1}$ sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à $R_{3,k+1}$.

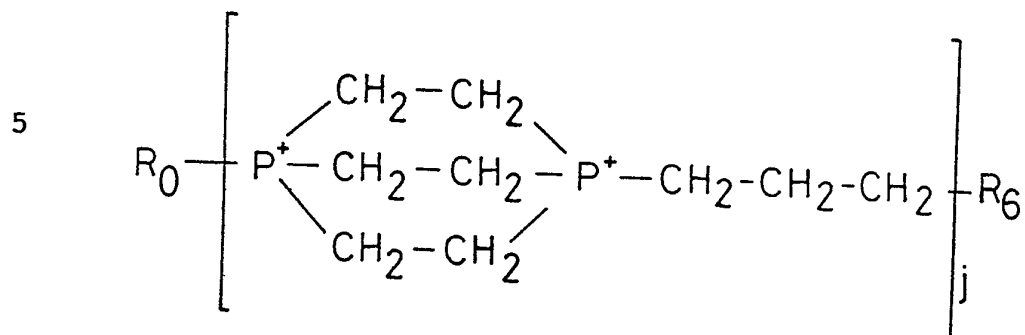
Des exemples de compositions de ce type sont
25 des compositions contenant au moins un composé de formule suivante :



avec r un nombre entier pair



ou encore :

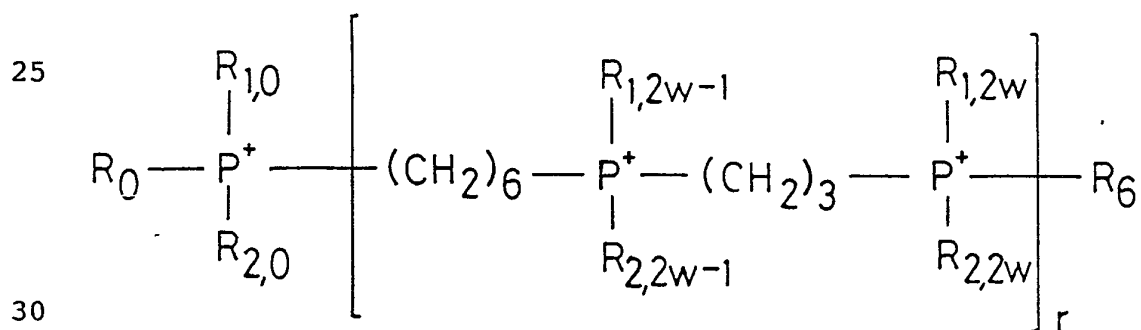


(VII)

j étant un nombre entier supérieur ou égal à 1.

Dans ces formules, données à titres d'exemples seulement R_0 , R_6 , w, etc ont les significations données précédemment.

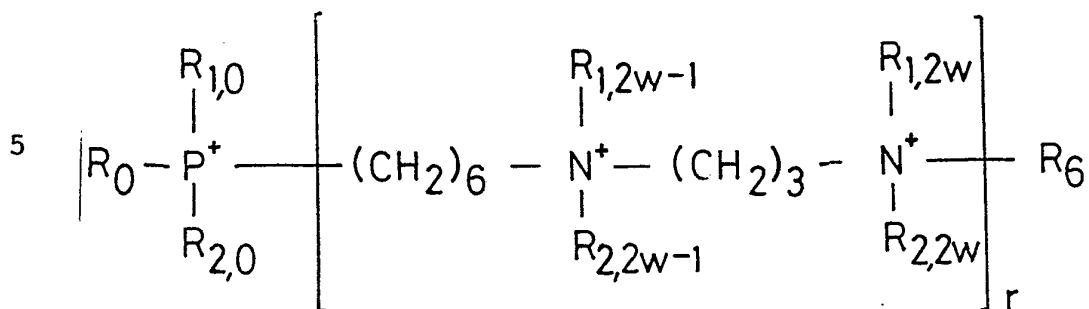
D'autres exemples de compositions suivant l'invention sont des compositions contenant au moins un composé de formule suivante :



(VIII)

avec w compris entre 1 et r

ou encore



(IX)

avec w compris entre 1 et r.

La présente invention est également relative à un procédé de désinfection de liquides, ce procédé étant caractérisé en ce qu'on ajoute à ce ou ces liquides au moins une composition suivant l'invention.

La présente invention a encore pour objet un procédé de désinfection de surfaces dans lequel on met ces surfaces en contact avec une composition suivant l'invention ;

un procédé de conservation de boissons ou d'aliments dans lequel on ajoute à ces boissons ou aliments une composition suivant l'invention.

Dans le cas des aliments on peut également tremper lesdits aliments dans une composition suivant l'invention.

D'autres particularités et détails de l'invention ressortiront de la description détaillée

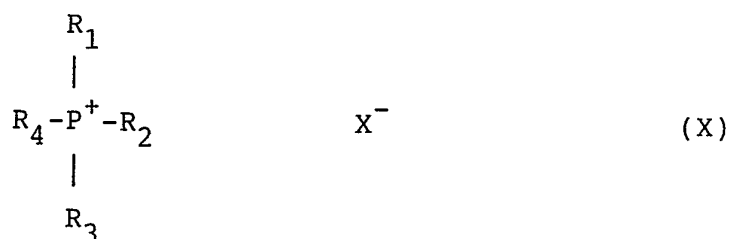
suiivante d'exemples de composition.

Le demandeur a remarqué que l'utilisation de
phosphonium quaternaire en particulier en présence
5 d'ions de cuivre et/ou d'argent permet d'obtenir une
désinfection remarquable d'eaux de piscine.

En particulier et de façon surprenante, on a
constaté que lorsqu'on utilise, pour la désinfection
10 d'eaux, telles que les eaux de piscine une combinaison
d'au moins un composé de phosphonium quaternaire et
d'ions de métaux, tels que le cuivre, l'argent, le
manganèse, le fer et le zinc, la vitesse de destruction
de microorganismes présents dans ces eaux est accrue
15 dans une proportion très nettement plus importante que
celle qui résulterait de la simple addition des effets
séparés des ions précités et des composés de phosphonium
quaternaire.

La présente invention a donc, entre autres,
pour objet un procédé dans lequel on traite de l'eau à
désinfecter, d'une part, par des ions d'au moins un
métaï·choisi parmi le cuivre, l'argent, le manganèse et
le zinc, de préférence des ions de cuivre et/ou d'argent
25 et, d'autre part, par au moins un sel de phosphonium
quaternaire. Ce sel de phosphonium quaternaire répond,
de préférence, à l'une ou l'autre des formules
suivantes :

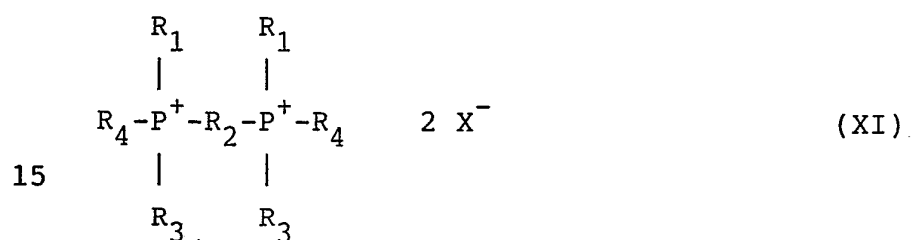
30



35

dans laquelle au moins un des symboles R_1 , R_2 , R_3 et R_4 désigne un radical alkyle contenant plus de 6 atomes de carbone et le ou les autres symboles R_1 , R_2 , R_3 et R_4 désignent un radical alkyle contenant de 1 à 6 atomes de carbone ou un radical aryle monocyclique éventuellement substitué, par exemple par un radical alkyle inférieur, par un halogène ou par un groupe hydroxy, tandis que X désigne un anion choisi parmi le chlore, le brome, l'iode, le bicarbonate ou le phosphate ;

10



15

dans laquelle les symboles R_1 , R_2 , R_3 , R_4 et X ont les significations indiquées plus haut.

20

Comme exemples particuliers de composés de phosphonium quaternaire utilisables dans le cadre de la présente invention, qui sont solubles dans l'eau et sont inodores, on peut citer les composés suivants :

25

- bromure de triphényl hexadécyl phosphonium,
- bromure de triphényl octadécyl phosphonium,
- bromure de triphényl dodécyl phosphonium,
- bromure de triéthyl dodécyl phosphonium,
- 30 - bromure de diméthyl dodécyl phényl phosphonium,
- chlorure de triphényl benzyl phosphonium,
- chlorure de diméthyl dodécyl phényl phosphonium,
- bromure de diéthyl dodécyl phényl phosphonium,
- bromure de tripropyl dodécyl phosphonium,

- bromure de dodécyl tritolyl phosphonium,
- bromure de dodécyl diphényl tolyl phosphonium,
- bromure de cétyl triphényl phosphonium,
- bromure de méthyl dioctyl phényl phosphonium,
- 5 - iodure de triéthyl dodécyl phosphonium,
- bromure d'octadécyl α, ω bis-triphényl phosphonium,
- bromure d'hexadécyl α, ω bis-triéthyl phosphonium.

Dans ce procédé suivant l'invention, on
10 utilise, de préférence, au moins un composé de phosphonium de formule X ou XI donnée plus haut, à raison de 0,5 à 5 parties par million de parties du milieu aqueux à désinfecter. Quant aux ions de métaux, qui peuvent être produits au sein du milieu aqueux par
15 électrolyse ou par addition à celui-ci de sels hydrosolubles de ces métaux, tels que sulfate, chlorure, nitrate, etc., ils sont utilisés à des concentrations connues, par exemple de 0,5 à 1,5 ppm pour les ions de cuivre et/ou de 1 à 50 ppb, plus particulièrement de 1 à
20 10 ppb, pour les ions d'argent.

Pour le procédé décrit ci-dessus, des compositions pour le traitement d'eaux en vue de leur désinfection peuvent se présenter sous forme d'un
25 mélange solide ou d'une solution ou dispersion aqueuse contenant au moins un composé hydrosoluble d'un métal choisi parmi le cuivre, l'argent, le manganèse et le zinc et au moins un composé de phosphonium quaternaire répondant à l'une ou l'autre des formules X et XI
30 données plus haut.

L'action synergique inattendue du procédé et de la composition décrits ci-dessus est illustrée par les essais comparatifs suivants, basés sur la vitesse de
35 destruction de divers micro-organismes choisis à titre

d'exemples non limitatifs parmi les micro-organismes infestant couramment les eaux de piscines de natation.

Les mesures des vitesses de destruction des
5 germes de micro-organismes ont été effectuées, dans les
exemples illustratifs suivants selon la méthode AOAC
(American Official Analytical Chemist, 1980, pages 58 à
68) modifiée comme suit : pas d'utilisation de produit
neutralisant dans le premier tube de dilution de
10 l'échantillon de suspension bactérienne, mais dilutions
de l'échantillon effectuées selon des facteurs de 10
en 10 jusqu'au facteur 100.000 immédiatement après la
prise d'échantillons.

EXEMPLE 1

Souche bactérienne : Streptococcus faecalis ATCC 6569.

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35° F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 μ

Concentration : 1.10^6 germes par ml

- 5 Composé de phosphonium quaternaire utilisé :
bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

10	<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>	
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 45 secondes de contact.
20	- 1 ppm ions cuivre	100 %
	- 40 ppb ions argent	100 %
	- 0,5 ppm composé de phosphonium	13 %
25	- 1 ppm ions cuivre + 40 ppb ions argent + 0,5 ppm composé de phosphonium	0,1 %

EXEMPLE 2

Souche bactérienne : Echerischia coli ATCC 11229

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée sur
filtre Millipore 0,45 μ

Concentration initiale en germes :

5 $1,4 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé :

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

10	<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>	
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 5 minutes de contact.
20	- 1 ppm ions cuivre	100 %
	- 50 ppb ions argent	100 %
	- 5 ppm composé de phosphonium	20 %
25	- 1 ppm ions cuivre + 5 ppb ions argent + 5 ppm composé de phosphonium	0,1 %

EXEMPLE 3

Souche bactérienne : *Pseudomonas aeruginosa* ATCC 17939

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35° F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 μ

Concentration initiale en germes :

5 $1,3 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire :

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

10	<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>	
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 5 minutes de contact.
20	- 1 ppm ions cuivre	100 %
	- 5 ppb ions argent	100 %
	- 3 ppm composé de phosphonium	30 %
25	- 1 ppm ions cuivre + 5 ppb ions argent + 3 ppm composé de phosphonium	0,1 %

EXEMPLE 4

Souche bactérienne : Escherischia coli ATCC 11229

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35° F) filtrée
sur filtre Millipore 0, 45 µ

Concentration initiale en germes :

5 $0,95 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium utilisé :

bromure d'octadécyl triphényl phosphonium

10	<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>	
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 5 minutes de contact.
20	- 1 ppm ions cuivre	100 %
	- 5 ppb ions argent	100 %
	- 3 ppm composé de phosphonium	20,4 %
25	- 1 ppm ions cuivre + 5 ppb ions argent + 3 ppm composé de phosphonium	0,6 %

EXEMPLE 5

Souche bactérienne: Staphylococcus epidermidis ATCC 12228

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 μ

Concentration initiale en germes :

5 $4,55 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé:

bromure de dodécyl triphényl phosphonium

10	<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>		
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après	
		1 minute	5 minutes
20	- 1 ppm ions cuivre	100 %	100 %
	- 40 ppb ions argent	100 %	100 %
	- 3 ppm composé de phosphonium	41,3 %	0,04 %
25	- 1 ppm ions cuivre + 40 ppb ions argent + 3 ppm composé de phosphonium	1 %	0,0003 %

EXEMPLE 6

Souche bactérienne: Staphylococcus Auréus ATCC 6538

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration : 1.10^6 germes par ml

5

Composé de phosphonium quaternaire utilisé:

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

Le composé d'ammonium quaternaire utilisé est
10 préparé de la manière décrite ci-après.

<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>		
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
20	- 1 ppm ions cuivre	95
	- 2 ppm de composé d'ammonium +	
	1 ppm ions cuivre	0,0001
25	- 1,9 ppm de composé d'ammonium +	
	0,1 ppm de composé de phosphonium + 1ppm ions cuivre	0,00000
30	- 0,1ppm de composé de phosphonium + 1ppm ions cuivre	0,12

EXEMPLE 7

Souche bactérienne: Echerichia coli ATCC 11229

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 μ

Concentration initiale en germes :

5 $0,95 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé:

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

Composé d'ammonium quaternaire utilisé :

composé de l'exemple 6

10

<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>	
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés
	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
20	- 1 ppm ions cuivre + 2 ppm de composé d'ammonium
	0,04
25	- 1 ppm ions cuivre + 1,9 ppm de composé d'ammonium + 0,1 ppm de composé de phosphonium
	0,004
30	- 1 ppm ions cuivre 1,8 composé ammonium + 0,2 ppm composé phosphonium
	0,00002

EXEMPLE 8

Souche bactérienne: *Pseudomonas aeruginosa* ATCC 17939

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 μ

Concentration initiale en germes :

5 $1,3 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé :

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

Composé d'ammonium quaternaire utilisé :

composé de l'exemple 6

10

<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>	
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés
	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
20	- 1 ppm ions cuivre + 2 ppm de composé d'ammonium
	0,005
25	- 1 ppm ions cuivre + 1,9 ppm de composé d'ammonium + 0,1 ppm de composé de phosphonium
	0,0008
30	- 1 ppm ions cuivre 1,8 composé ammonium + 0,2 ppm composé phosphonium
	0,00005

EXEMPLE 9

Souche bactérienne: Acinetobacter lwoffii

Milieu aqueux : eau de ville (dureté : 35°F) filtrée
sur filtre Millipore 0,45 µ

Concentration initiale en germes :

5 $1 \cdot 10^6$ germes par ml

Composé de phosphonium quaternaire utilisé :

bromure de triphényl hexadécyl phosphonium

Composé d'ammonium quaternaire utilisé :

composé de l'exemple 6

10

<u>Vitesse de destruction des germes bactériens</u>		
15	Quantité et nature des ingrédients ajoutés	% de bactéries restantes après 30 minutes de contact
20	- 1 ppm ions cuivre + 2 ppm de composé d'ammonium	0,03
25	- 1 ppm ions cuivre + 1,9 ppm de composé d'ammonium + 0,1 ppm de composé de phosphonium	0,005
30	- 1 ppm ions cuivre 1,8 composé ammonium + 0,2 ppm composé phosphonium	0,0002

Le composé d'ammonium utilisé dans les exemples 6 à 9 a été préparé de la manière suivante :

On a mélangé 5,17 g de tétraméthylhexane
5 diamine avec 3,03 g de 1,3 dibromopropane dans 32,9 ml d'eau.

On a porté le mélange à 60° C et on a agité ledit mélange pendant 4 heures.

10

On a ensuite porté le mélange à 85° C et on a ajouté 9,16 g de bromohexadécane.

On a agité la solution pendant 12 heures.

15

On a ensuite dilué la solution obtenue avec une quantité d'eau correspondant à 20 fois le poids de la solution et on a traité ladite solution au charbon actif.

20

Le composé d'ammonium avait un poids moléculaire de 1157 g.

Le bromure de triphényl hexadécyl phosphonium
25 a été obtenu de la manière suivante :

On a mélangé 13,11 g de triphénylphosphine à 15,26 g de bromure d'hexadécane. Le réacteur est maintenu à 110° C sous atmosphère d'argon et sous
30 agitation.

Après 24 heures de réaction, le mélange était limpide et contenait plus de 90 % de bromure d'hexadécyl triphényl phosphonium.

Des composés comprenant à la fois des groupements phosphonium et ammonium peuvent être obtenus de la manière suivante :

5 On mélange 17,23 g de 1,6 tétraméthylhexane diamine avec 15,75 g de 1,3 bromochloropropane dans 100 g d'eau. On porte le mélange à 65° C et on maintient ce mélange à cette température et sous agitation pendant 3 heures.

10

On ajoute ensuite 26,2 g de triphényl phosphine.

On porte ce mélange à 121°C sous atmosphère
15 d'argon et on maintient celui-ci à cette température et sous agitation pendant 16 heures.

On ajoute enfin 30,5 g de 1 bromohexadécane et on chauffe le mélange sous agitation à 90° C pendant
20 12 heures.

Le produit obtenu avait un poids moléculaire de 897,38 g.

25 Dans le cas où la composition ou le procédé suivant l'invention sont appliqués à la désinfection d'eau, on utilise, de préférence au moins un phosphonium quaternaire de formule I tel que défini plus haut, à raison de 0,5 à 1000 parties par million (ppm) du milieu
30 aqueux à désinfecter. Quant aux ions des métaux, tels que le cuivre et l'argent, qui peuvent être produits au sein de ce milieu aqueux par l'électrolyse ou par addition à celui-ci de sels hydrosolubles de ces métaux, tels que sulfate, chlorure, nitrate, etc, ils sont
35 utilisés, de préférence, à des concentrations de 0,5 à

5 ppm pour les ions de cuivre et de 1 à 50 ppb (parties par milliard) , plus particulièrement de 1 à 10 ppb pour les ions d'argent. De façon avantageuse on utilise de 1 à 1000 ppm, de préférence de 1 à 10 ppm d'un composé d'ammonium quaternaire en plus du phosphonium quaternaire et des ions de métaux.

Lorsqu'on doit désinfecter des surfaces, la composition suivant l'invention est projetée ou pulvérisée sur lesdites surfaces.

Il va de soi que pour désinfecter des surfaces, il est également possible de tremper les surfaces à désinfecter dans un bain.

La composition suivant l'invention est également utile pour la conservation d'aliments ou de boissons puisqu'elle permet une destruction rapide des germes au moyen de très faible quantité et qu'elle reste efficace pendant une longue période de temps.

REVENDICATIONS

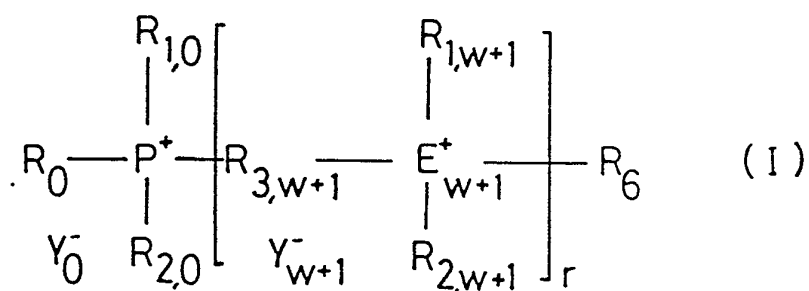
1. Composition destinée à la désinfection de liquides et/ou surfaces ou à la conservation d'aliments ou boissons, caractérisée en ce que la composition contient :

5

- au moins un composé de phosphonium quaternaire répondant à la formule suivante :

10

15



20 dans laquelle :

r est un nombre entier éventuellement égal à 0 ;

w est un nombre entier compris entre 0 et r ;

25 R_0 et R_6 qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone ;

30 $\text{R}_{1,0}$, $\text{R}_{2,0}$, $\text{R}_{1,g+1}$ et $\text{R}_{2,g+1}$ pour g compris entre 0 et r désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement

hydroxyle, $R_{1,g+1}$ et $R_{2,g+1}$ pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone, $R_{1,g+1}$ et/ou $R_{2,g+1}$ pouvant être reliés respectivement à $R_{1,g+2}$ et/ou $R_{1,g}$ et à $R_{2,g+2}$ et/ou $R_{2,g}$;

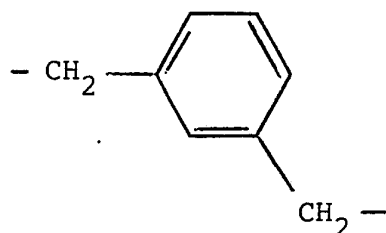
5

E_{w+1} étant choisi pour w compris entre 0 et r parmi N et P ;

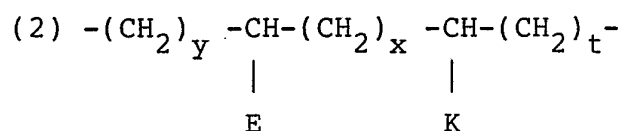
$R_{3,w+1}$ désigne un groupe hydrocarboné éventuellement
10 insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe de formule :

(1) o-, m- ou p-xylylidène de formule :

15

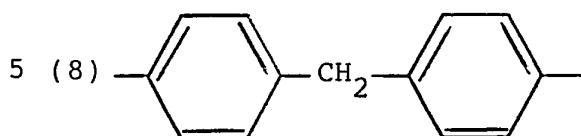
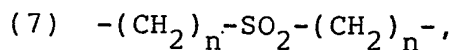


20

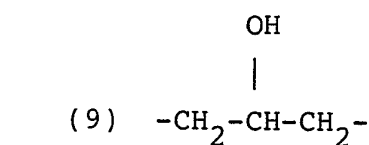


25 où x , y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de $x + y + t$ est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de
30 carbone ;

- (3) $\text{-(CH}_2\text{)}_n \text{-S-(CH}_2\text{)}_n \text{-}$,
 (4) $\text{-(CH}_2\text{)}_n \text{-O-(CH}_2\text{)}_n \text{-}$,
 (5) $\text{-(CH}_2\text{)}_n \text{-S-S-(CH}_2\text{)}_n \text{-}$,
 35 (6) $\text{-(CH}_2\text{)}_n \text{-SO-(CH}_2\text{)}_n \text{-}$



10 où n est égal à 1, 2 ou 3.



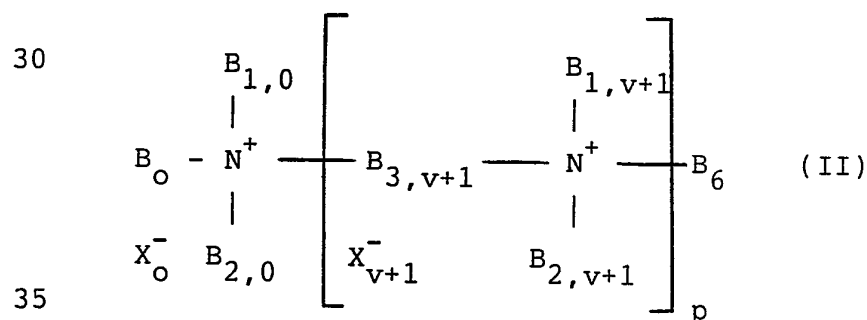
15

et

Y_O^- et Y_W^- désignent un anion, de préférence un halogène.

20 2. Composition suivant la revendication 1, caractérisée en ce qu'elle contient au moins un composé de phosphonium quaternaire de formule 1 dans laquelle $\text{E}_{\text{w}+1}$ désigne, pour au moins un w, N.

25 3. Composition suivant la revendication 1 ou 2, caractérisée en ce qu'elle contient également un composé d'ammonium quaternaire de poids moléculaire supérieur à 1000, de formule :



dans laquelle

p est un nombre entier éventuellement égal à 0;

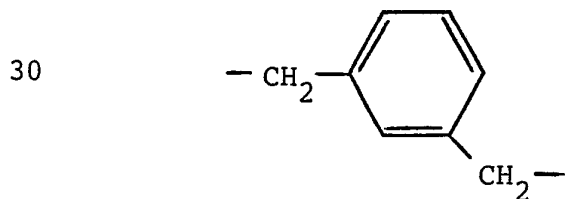
5 v est un nombre entier compris entre 0 et p ;

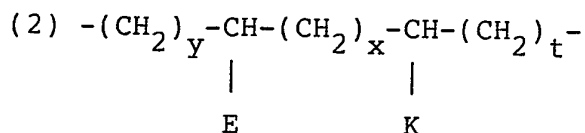
B_0 et B_6 qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical
10 contenant de 1 à 22 atomes de carbone;

$B_{1,0}$, $B_{2,0}$, $B_{1,v+1}$ et $B_{2,v+1}$ pour v compris entre 1 et p désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes
15 ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement hydroxyle, $B_{1,0}$, $B_{2,0}$, $B_{1,v+1}$ et $B_{2,v+1}$ pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de carbone, $B_{1,v+1}$ et/ou $B_{2,v+1}$ pouvant être reliés respectivement à $B_{1,v+2}$ et/ou $B_{1,v}$ et à $B_{2,v+2}$ et/ou $B_{2,v}$;
20

$B_{3,v+1}$ pour v compris entre 0 et p désigne un groupe hydrocarboné éventuellement insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe de formule
25

(1) o-, m- ou p-xylydène de formule :

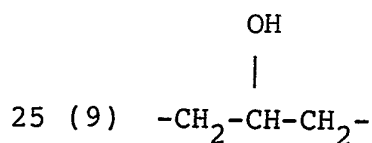
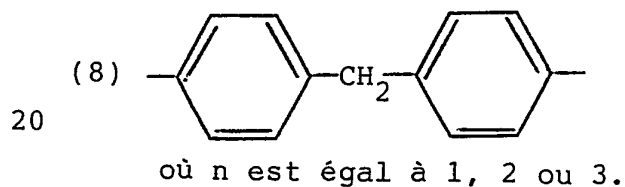




5 où x, y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de x + y + t est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de

10 carbone ;

- (3) $\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-S-(CH}_2\text{)}_n\text{-}$,
 (4) $\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-O-(CH}_2\text{)}_n\text{-}$,
 (5) $\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-S-S-(CH}_2\text{)}_n\text{-}$,
 15 (6) $\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-SO-(CH}_2\text{)}_n\text{-}$,
 (7) $\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-SO}_2\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-}$,



et

X_O^- et $\text{X}_{\text{v}+1}^-$ désignent un anion, de préférence, un

30 atome d'halogène.

4. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que

35 l'anion est un atome de chlore ou de brome.

5. Composition suivant la revendication 1 ou 3, caractérisée en ce que le composé d'ammonium quaternaire a un poids moléculaire supérieur à 1000, de préférence compris entre 1000 et 5000.

5

6. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que R_0 , R_6 et/ou B_0 , B_6 contiennent de 16 à 22 atomes de carbone, de préférence 16 atomes de carbone.

10

7. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que pour au moins un k compris entre 0 et r , $R_{1,k}$ et $R_{1,k+1}$ sont reliés entre eux et/ou $R_{2,k}$ et $R_{2,k+1}$ sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à $R_{3,k+1}$.

15

8. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que pour au moins un l compris entre 0 et p , $B_{1,l}$ et $B_{1,l+1}$ sont reliés entre eux et/ou $B_{2,l}$ et $B_{2,l+1}$ sont reliés entre eux en formant de préférence un groupe identique à $B_{3,l+1}$.

20

9. Composition suivant la revendication 7 ou 8, caractérisée en ce que $R_{1,k}$ et $R_{1,k+1}$ et/ou $R_{2,k}$ et $R_{2,k+1}$ et/ou $B_{1,l}$ et $B_{1,l+1}$ et/ou $B_{2,l}$ et $B_{2,l+1}$ forment un groupe $-(CH_2)_2-$

25

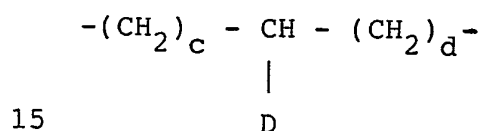
10. Composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 6, caractérisée en ce que $R_{3,k+1}$ est un groupe de formule $-CH_2-CH_2-CH_2-$ lorsque k est un nombre pair, tandis que $R_{3,k+1}$ est un groupe de formule $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$ lorsque x est un nombre impair, ou inversement.

30

35

11. Composition suivant la revendication 3, caractérisée en ce que $B_{3,l+1}$ est un groupe de formule $-CH_2-CH_2-CH_2-$ lorsque l est un nombre pair, tandis que $B_{3,l+1}$ est un groupe de formule $-CH_2-CH_2-CH_2-$ 5 $CH_2-CH_2-CH_2-$ lorsque l est un nombre impair, ou inversement.

12. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce que 10 $R_{3,k+1}$ et $B_{3,l+1}$ pour au moins un k ou l compris entre 0 et r ou 0 et p est un groupe de formule



dans laquelle D désigne un atome d'hydrogène ou un radical C_{1-4} alkyle,

20 c et d sont des nombres entiers inférieurs à 5 dont l'un peut avoir une valeur égale à 0 tandis que la somme $c + d$ est au moins égale à 1 et au maximum égale à 8.

25 13. Composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisée en ce qu'elle contient au moins un composé de phosphonium quaternaire de formule (1) et au moins un ion d'un métal.

30

14. Composition suivant la revendication 13, caractérisée en ce qu'elle contient au moins un ion d'un métal choisi parmi le fer, le cuivre, l'argent, le manganèse, le zinc ou un mélange de tels ions.

35

15. Procédé de désinfection de liquides, caractérisé en ce qu'on ajoute à ces liquides au moins une composition suivant l'une quelconque des revendications précédentes.

5

16. Procédé de désinfection de surfaces infectées, caractérisée en ce qu'on met ces surfaces en contact avec au moins une composition désinfectante suivant l'une quelconque des revendications 1 à 14.

10

17. Procédé de conservation de boissons dans lequel on ajoute auxdites boissons une composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 14.

15

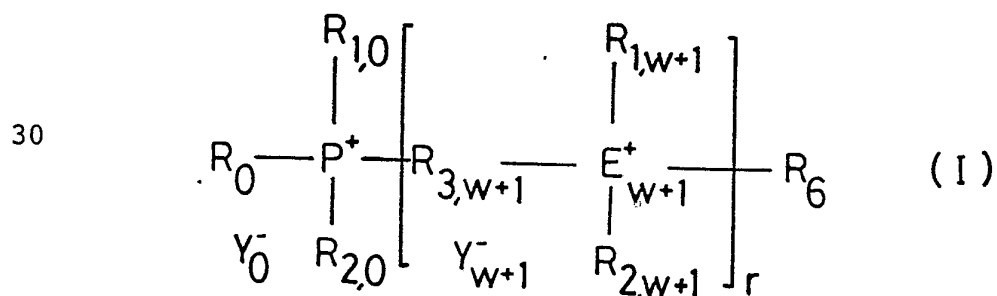
18. Procédé de conservation d'aliments dans lequel on injecte dans lesdits aliments une composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 14.

20

19. Procédé de conservation d'aliments, dans lequel on trempe lesdits aliments dans une composition suivant l'une quelconque des revendications 1 à 14.

25

20. Composé d'ammonium quaternaire de poids moléculaire supérieur à 1000 de formule



35

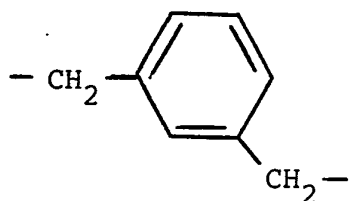
dans laquelle r est un nombre entier au moins égal à 1 ;

w est un nombre entier compris entre 1 et r ;

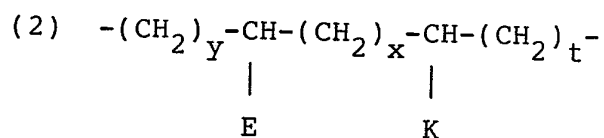
- 5 R_0 et R_6 qui peuvent être identiques ou différents désignent un radical hydrocarboné éventuellement substitué et éventuellement insaturé, ce radical contenant de 1 à 22 atomes de carbone ;
- 10 $R_{1,g+1}$ et $R_{2,g+1}$ pour g compris entre 0 et r désignent un groupe hydrocarboné éventuellement ramifié, insaturé et/ou substitué par un ou plusieurs halogènes ou par un groupement hydrocarboné ou par un groupement hydroxyle, $R_{1,g+1}$ et $R_{2,g+1}$ pouvant contenir jusqu'à 22 atomes de
- 15 carbone, $R_{1,g+1}$ et/ou $R_{2,g+1}$ pouvant être reliés respectivement à $R_{1,g+2}$ et/ou $R_{1,g}$ et à $R_{2,g+2}$ et/ou $R_{2,g}$;
- 20 E_{w+1} étant choisi pour w compris entre 1 et r parmi N et P, avec la condition qu'au moins pour un w , E_{w+1} désigne N ;
- 25 $R_{3,w+1}$ pour w compris entre 1 et r désigne un groupe hydrocarboné éventuellement insaturé et/ou ramifié pouvant contenir jusqu'à 20 atomes de carbone ou un groupe de formule :

(1) o-, m- ou p-xylylidène de formule :

30

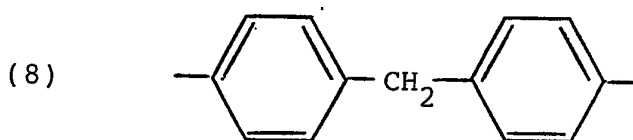
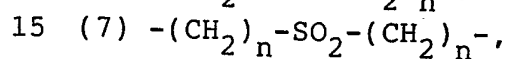
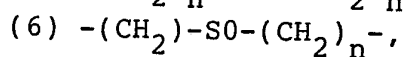
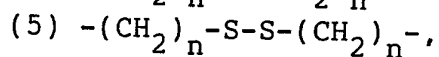
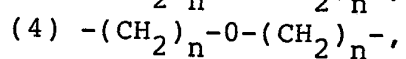
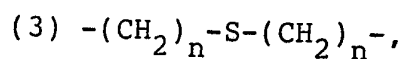


35



5 où x, y et t sont des nombres entiers allant de 0 à 11, tels que la somme de x + y + t est égale ou supérieure à 0 et inférieure à 18, tandis que les symboles E et K désignent de l'hydrogène ou des radicaux alkyle contenant moins de 18 atomes de carbone,

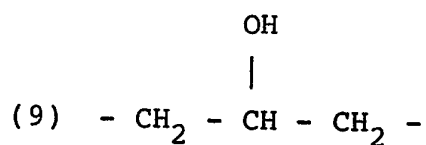
10



20

où n est égal à 1, 2 ou 3

25



30

et

Y_O^- et $\text{Y}_{\text{w}+1}^-$ désignent un anion de préférence, un halogène.



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE
établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2
de la loi belge sur les brevets d'invention
du 28 mars 1984

Numero de la demande
nationale

BE 8901081
BO 1963

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.5)
X	US-A-3 281 365 (K. MOEDRITZER) * Colonne 1 lignes 33-49 * ---	1,5,7, 14-18	A 01 N 57/34 A 01 N 57/36
X	US-A-3 364 141 (H. BERENSON et al.) * Colonne 4, lignes 29-35 * ---	1,5,13- 18	C 07 F 9/54 C 08 G 79/06 C 02 F 1/50
X	CH-A- 145 070 (I.G. FARBENINDUSTRIE) * Colonne 1, lignes 1-19 * ---	1,5,15	
X	EP-A-0 139 404 (ALBRIGHT & WILSON) * Page 1, lignes 1-19 * ---	1,5,7, 14-18	
X	EP-A-0 258 737 (HENKEL) * Revendications * ---	1,4,5,7, 14-18	
X	US-A-4 835 143 (D.K. DONOFRIO et al.) * Colonne 2, ligne 57 - colonne 3, ligne 16 * ---	1,4,5,7, 14-18	
X	JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, part I, 1963, pages 1036-1044, The Chemical Society, Letchworth, GB; P.E. HORN et al.: "The reactions of organic derivatives of elements capable of valency-shell expansion. part VII.* further experiments with quaternary phosphonium salts" * Pages 1040-1041(C) * ---	19	DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5) A 01 N C 07 F C 08 G
X	INORGANIC CHEMISTRY, vol. 8, no. 6, juin 1969, pages 1336-1340, American Chemical Society, Easton, US; K.L. LUNDBERG et al.: "Gem-dibasic ligands with phosphorus, sulfur, and nitrogen sites, and some borane derivatives" * page 1339, colonne de droite, alinéa 3 * --- -/-	19	
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
28-06-1990		DECORTE D.	
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES			
X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire			
T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant			

ABSENCE D'UNITE D'INVENTION

La présente demande ne satisfait pas à l'exigence relative à l'unité d'invention et concerne plusieurs inventions ou pluralités d'inventions, à savoir

1. Revendications :

2. Revendications :

3. Revendications :

4. Revendications :

Le présent rapport de recherche a été établi de façon complète pour les parties de la demande qui se rapportent à l'invention ou pluralité d'inventions mentionnée dans les revendications:

ETENDUE DE LA RECHERCHE

Compte tenu des documents considérés comme pertinents, le présent rapport de recherche a été établi de façon complète pour les parties de la demande qui se rapportent à l'invention ou pluralité d'inventions mentionnée en premier lieu dans les revendications, à savoir les revendications :

Les éléments figurant dans les

1. Revendications :

2. Revendications :

3. Revendications :

4. Revendications :

n'ont pas été pris en considération que dans le cadre de la recherche relative aux caractéristiques de l'invention ou de la pluralité d'inventions mentionnée en premier lieu dans les revendications



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE
établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2
de la loi belge sur les brevets d'invention
du 28 mars 1984

Numero de la demande
nationale
Page 2

BE 8901081
BO 1963

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.5)
A	WO-A-8 702 221 (FABRICOM AIR CONDITIONING) -----	1-19 /	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5)
Date d'achèvement de la recherche 28-06-1990		Examineur DECORTE D.	
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant			

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET BELGE NO.**

BE 8901081
BO 1963

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

Lesdits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du 10/07/90

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

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US-A- 3281365		Aucun	
US-A- 3364141		Aucun	
CH-A- 145070		Aucun	
EP-A- 0139404	02-05-85	AU-B- 563765	23-07-87
		AU-A- 3247384	28-02-85
		CA-A- 1245126	22-11-88
		DE-A- 3469162	10-03-88
		GB-A, B 2145708	03-04-85
		JP-A- 60072807	24-04-85
		US-A- 4673509	16-06-87
EP-A- 0258737	09-03-88	DE-A- 3628801	03-03-88
		JP-A- 63060903	17-03-88
US-A- 4835143	30-05-89	Aucun	
WO-A- 8702221	23-04-87	LU-A- 86123	02-06-87
		EP-A- 0250459	07-01-88
		JP-T- 63501793	21-07-88
		US-A- 4923619	08-05-90