

Code de distribution interne :

- (A) [] Publication au JO
(B) [] Aux Présidents et Membres
(C) [X] Aux Présidents
(D) [] Pas de distribution

D E C I S I O N
du 10 décembre 2003

N° du recours : T 1196/01 - 3.3.3

N° de la demande : 96903043.6

N° de la publication : 0760824

C.I.B. : C08F 4/00

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :

Polymérisation en présence d'un radical nitroxyde
beta-substitué

Titulaire du brevet :

Atofina

Opposant :

Akzo Nobel N.V.

Référence :

-

Normes juridiques appliquées :

CBE Art. 54, 56

CBE R. 71(1), 71(2)

Mot-clé :

"Nouveauté (oui)"

"Activité inventive (oui)"

Décisions citées :

T 0450/89

Exergue :

-



N° du recours : T 1196/01 - 3.3.3

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.3
du 10 décembre 2003

Requérante : Akzo Nobel N.V.
(Opposante) Patent Department
Velperweg 76
P.O. Box 9300
NL-6800 SB Arnhem (NL)

Mandataire : -

Intimée : Atofina
(Titulaire du brevet) 4/8 Cours Michelet
F-92800 Puteaux (FR)

Mandataire : -

Décision attaquée : Décision de la Division d'opposition de l'Office européen des brevets signifiée par voie postale le 25 septembre 2001 par laquelle l'opposition formée à l'égard du brevet n°0760824 a été rejetée conformément aux dispositions de l'article 102(2) CBE.

Composition de la Chambre :

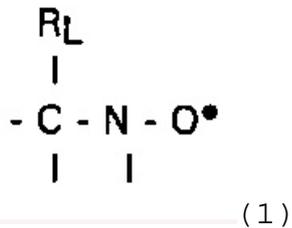
Président : R. Young
Membres : C. Idez
J. van Moer

Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet européen n° 96 903 043.6 déposée le 2 février 1996, pour laquelle ont été revendiquées les priorités du 7 février 1995 (FR 9501380) et du 13 juin 1995 (FR 9506967), a donné lieu le 21 avril 1999 (Bulletin 1999/16) à la délivrance du brevet européen n° 0 760 824 sur la base de 23 revendications.

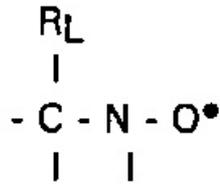
Les revendications indépendantes 1 et 2 s'énonçaient comme suit :

"1. Procédé de polymérisation ou copolymérisation d'au moins un monomère polymérisable par voie radicalaire en présence d'un radical libre stable comprenant un enchaînement de formule



dans laquelle le radical R_L présente une masse molaire supérieure à 15, caractérisé en ce que R_L comprend un groupement phosphoryle.

2. Procédé de polymérisation ou copolymérisation d'au moins un monomère polymérisable par voie radicalaire en présence d'un radical libre stable comprenant un enchaînement de formule



(1)

dans laquelle le radical R_L présente une masse molaire supérieure à 15, caractérisé en ce qu'il est conduit avec un taux de conversion de monomère en polymère ou copolymère supérieur à 50% et à une température et une durée suffisante pour mener à un polymère ou copolymère de masse moléculaire moyenne en poids supérieure à 10 000."

Les revendications 3 à 23 étaient des revendications dépendantes.

II. Le 21 janvier 2000 une opposition a été formée à l'encontre du brevet européen précité dans laquelle la révocation du brevet était requise au titre des motifs énoncés à l'article 100a) EPC. Selon l'opposante, l'objet revendiqué n'était pas nouveau et n'impliquait pas d'activité inventive. Pour soutenir ses objections elle a cité les documents suivants :

- D1 : US-A-5 006 663 ;
- D2 : US-A-5 322 912 ;
- D3 : EP-A-0 135 280 ; et
- D4 : JP-A-01 100 182 (résumé).

III. Par décision en date du 4 juillet 2001, signifiée le 25 septembre 2001, la Division d'opposition a estimé que les objections soulevées ne s'opposaient pas au maintien

du brevet tel que délivré et, en conséquence, a rejeté l'opposition.

- IV. Dans sa décision, la Division d'opposition a considéré que le document D1, bien que divulguant le radical libre tel que défini dans la revendication 1 du brevet en cause, ne détruisait pas la nouveauté de cette revendication puisqu'il ne concernait pas un procédé de polymérisation. Elle a en outre considéré que le document D2 ne détruisait pas la nouveauté de la revendication indépendante 2 car il ne décrivait pas des radicaux libres stables ayant un groupe R_L de masse moléculaire supérieure à 15 en position S . Concernant l'activité inventive, le document D2 fut considéré comme représentant l'état de la technique le plus proche. Partant de D2, le problème technique fut défini comme la mise à disposition d'un procédé de polymérisation par voie radicalaire permettant une augmentation du taux de conversion et du poids moléculaire en nombre tout en gardant une polydispersité peu élevée. La Division d'opposition a considéré que la comparaison entre les exemples 5 à 6 et l'exemple comparatif 14, et la comparaison entre l'exemple 9 et les exemples comparatifs 10 à 13 montraient que des polymères ayant une polydispersité peu élevée étaient effectivement obtenus. Elle est donc parvenue à la conclusion que l'objet des revendications 1 et 2 impliquait une activité inventive.
- V. Le 2 novembre 2001 la requérante (opposante) a formé un recours à l'encontre de cette décision en acquittant simultanément la taxe de recours prescrite. Avec le mémoire de recours reçu le 24 janvier 2002 la requérante a soumis un nouveau document :

D5 : R. Deanin et al "Carbonatotetraminocobaltic Nitrate Activation of Butadiene-Styrene Emulsion Copolymerization", Journal of Polymer Science; Vol. 3, No. 3, 1948 ; pages 421 à 432.

Elle a argumenté en substance de la façon suivante :

- i) Le document D1 indiquait que les nitroxydes cycliques usuels peuvent être utilisés comme agents modifiants dans la chimie des polymères.
- ii) D1 ne dissuadait pas l'homme du métier d'utiliser les nouveaux nitroxydes divulgués dans ce document de manière conventionnelle, et donc dans un procédé de polymérisation. D1 détruisait donc la nouveauté de la revendication 1.
- iii) Le terme agent modifiant en chimie des polymères signifiait que ces produits pouvaient être utilisés dans un procédé de polymérisation. Ceci était supporté par le document D5 qui établissait que le terme agent modifiant désignait un produit utilisé dans un procédé de polymérisation pour réguler le poids moléculaire du polymère formé.
- iv) Concernant la revendication 2, le document D2 représentait l'état de la technique le plus proche.
- v) Partant de D2, le problème technique était de trouver une alternative aux radicaux libres stables décrits dans ce document.

- vi) Ces alternatives étaient cependant connues de D1. Donc la revendication 2 n'impliquait pas d'activité inventive.
- vii) Si toutefois l'on considérait D1 comme l'état de la technique le plus proche, il aurait été évident de combiner les nitroxydes décrits dans D1 avec un initiateur comme suggéré dans D2.
- viii) En outre, la titulaire du brevet n'avait démontré aucun effet surprenant lié à l'utilisation des nitroxydes. La polydispersité obtenue dans les exemples 5, 6 et 9 se situait était dans les valeurs attendues selon D2 et de toute façon dépendait du rapport radical stable/initiateur.

VI. Dans sa lettre datée du 14 mai 2002, l'intimée a constaté que les arguments présentés par la requérante étaient identiques à ceux présentés lors de la procédure devant la Division d'opposition. En outre, elle a considéré que le nouveau document D5 n'était pas pertinent.

VII. Par lettre du 31 octobre 2003, la requérante a informé la chambre qu'elle retirait sa requête en procédure orale et qu'elle n'assisterait pas à la procédure orale prévue pour le 10 décembre 2003.

VIII. Au cours de la procédure orale qui s'est tenue le 10 décembre 2003 en l'absence de la requérante, la discussion a porté essentiellement sur l'admission du document D5 dans la procédure et sur l'examen de la nouveauté et de l'activité inventive de l'objet des revendications du brevet en litige.

Les arguments présentés par l'intimée sur ces sujets lors de la procédure orale peuvent être résumés de la façon suivante :

i) Admission du document D5:

i.1) Ce document a été soumis tardivement et se référait à l'utilisation de mercaptans lors de la copolymérisation du styrène avec le butadiène.

i.2) Ce document n'était donc pas pertinent. Il ne devait donc pas être introduit dans la procédure.

ii) Nouveauté :

ii.1) Le document D1 décrivait effectivement des composés nitroxydes comme ceux de la revendication 1 du brevet en cause.

ii.2) Cependant, la mention dans D1 de l'utilisation de ces composés comme agents modifiants en chimie des polymères (voir colonne 1, lignes 17 à 18) ne divulguait pas leur utilisation lors d'un procédé de polymérisation.

ii.3) Le document D1 ne pouvait donc détruire la nouveauté de la revendication 1 du brevet en cause.

iii) Activité inventive :

iii.1) Le document D2 représentait l'état de la technique le plus proche.

- iii.2) Partant de D2 le problème technique à résoudre par le brevet en cause était de proposer un procédé de polymérisation permettant l'obtention de polymères de poids moléculaire élevé à faible polydispersité tout en ayant un très bon taux de conversion.
- iii.3) La comparaison entre les exemples selon l'invention (exemples 3 à 9) et ceux correspondant à l'enseignement de D2 (exemples 10 à 16) montraient que l'utilisation des composés nitroxydes selon le brevet en cause conduisait à un meilleur taux de conversion, un poids moléculaire plus élevé et une polydispersité plus faible. En outre les nitroxydes selon le brevet en cause permettaient de travailler à une température de polymérisation plus basse.
- iii.4) Ces effets ne pouvaient pas être prévus de l'enseignement de D2 (voir colonne 9, lignes 26 à 37 ; colonne 19, lignes 17 à 25).
- iii.5) Le document D3 était essentiellement concerné par la production d'oligomères et de macromères. Même si l'exemple 34(b) de D3 décrivait l'obtention d'un polymère ayant une masse moléculaire plus élevée, le rendement obtenu à la température de réaction de 80°C était uniquement de l'ordre de 20%. Il eut été attendu qu'une élévation de la température de réaction pour augmenter le taux de conversion conduisît à un accroissement de la polydispersité et une diminution du poids moléculaire.

iii.6) Le document D4 n'était absolument pas pertinent.

iii.7) L'objet des revendications indépendantes 1 et 2 impliquait donc une activité inventive.

IX. La requérante conclut à l'annulation de la décision contestée et à la révocation du brevet.

L'intimée conclut au rejet du recours.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.

Questions de procédure.

2. *Absence de la requérante à la procédure orale*

2.1 Dans une notification en date du 4 juillet 2003, les deux parties ont été dûment citées à une procédure orale pour le 10 décembre 2003 en application de la règle 71(1) CBE.

2.2 Par lettre en date du 31 octobre 2003, la requérante a retiré sa requête en procédure orale et a informé la chambre qu'elle n'assisterait pas à la procédure orale.

2.3 Cette procédure orale s'est déroulée le 10 décembre 2003. La requérante n'y étant pas représentée, la procédure orale s'est donc poursuivie en son absence conformément à la règle 71(2) CBE et à l'article 11(3) du règlement de procédure des chambres de recours.

3. *Admissibilité du document D5.*

3.1 Comme indiqué au point V. ci-dessus, la requérante a fait référence en support de ses allégations de manque de nouveauté au document D5 invoqué pour la première fois en procédure de recours.

3.2 La chambre a dûment examiné ce nouveau document qui concerne la copolymérisation du styrène avec le butadiène en présence d'un composé de type mercaptan comme agent régulateur du poids moléculaire et de prévention de réticulation. Elle a subséquemment considéré que son contenu n'était pas, à l'évidence, pertinent.

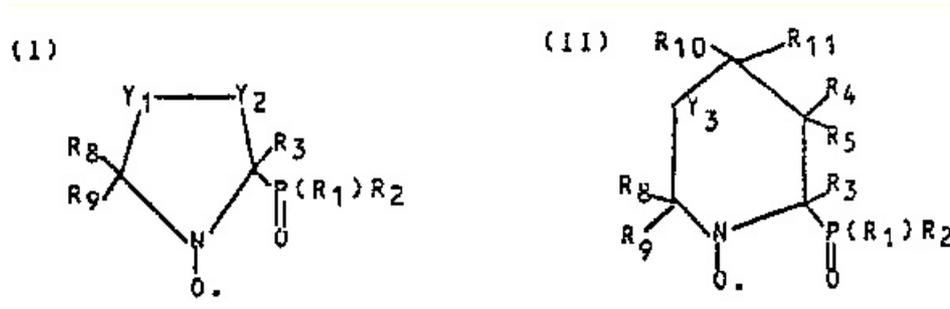
3.3 En application des dispositions de l'article 114(2) CBE, la chambre a donc décidé de ne pas tenir compte du document D5.

Requête principale

4. *Nouveauté*

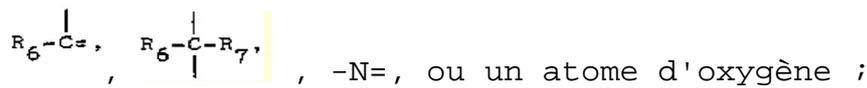
4.1 Lors de la procédure de recours la requérante a maintenu une objection de nouveauté uniquement à l'encontre de la revendication 1 au vu du document D1.

4.2 Le document D1 divulgue des composés nitroxydes cycliques ayant les structures suivantes :



dans lesquelles :

Y₁ représente :



Y₂ représente :

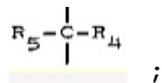


Y₃ représente :



et quand Y₁ est $R_6-C=$, ou un atome $-N=$, Y₂ est $R_4-C=$ et

quand Y₁ est R_6-C-R_7 , ou un atome d'oxygène, Y₂ est



les radicaux R₁, R₂, R₃, R₄, R₅, R₆, R₇, R₈, R₉, R₁₀ et R₁₁ peuvent être, entre autres, des radicaux alkyle (voir D1, colonne 2, ligne 22 à colonne 3, ligne 30).

4.3 Au vu de l'indication très générale dans D1 selon laquelle ces composés peuvent être notamment utilisés comme agents stabilisants ou modifiants dans la chimie des polymères (voir D1, colonne 1, lignes 13 à 18),

force est de constater que D1 ne divulgue pas de manière claire et non ambiguë leur utilisation lors d'un procédé de polymérisation radicalaire comme requis dans la revendication 1 du brevet en cause.

- 4.4 Par conséquent, D1 ne peut pas détruire la nouveauté de l'objet de la revendication 1 (cf. décision T 450/89 du 15 octobre 1991, non publiée dans le JO OEB).
- 4.5 La Division d'opposition a par ailleurs reconnu la nouveauté de la revendication indépendante 2 et cette conclusion n'a plus été contestée par la requérante dans la procédure de recours. La chambre, quant à elle, ne voit aucune raison au vu des documents cités (D1, D2, D3 et D4) de ne pas se rallier à l'opinion de la Division d'opposition.
- 4.6 Il résulte donc de ce qui précède que l'objet des revendications indépendantes 1 et 2, et *a fortiori* celui des revendications dépendantes 3 à 23 satisfont à l'exigence de nouveauté (article 54 CBE).

5. *Problème et solution*

- 5.1 La demande en cause concerne un procédé de polymérisation radicalaire en présence de radicaux nitroxydes.
- 5.2 Un tel procédé est connu du document D2 que la chambre comme la Division d'opposition considère comme l'état de la technique le plus proche.
- 5.3 Le document D2 décrit un procédé de polymérisation radicalaire pour la préparation de résines

thermoplastiques ayant un poids moléculaire moyen de 10 000 à 200 000 comprenant les étapes consistant à:

chauffer à une température comprise entre 100°C et 160°C un mélange comprenant au moins un monomère polymérisable, un initiateur de radicaux libres, un radical libre stable tel qu'un nitroxyde (par exemple le 2,2,5,5-tetraméthyl-1-pyrrolidinyloxy ou le 2,2,6,6-tetraméthyl-1-piperidinyloxy) pour former une résine ayant une polydispersité de 1 à 2, et à

refroidir ce mélange et isoler la résine thermoplastique obtenue (voir revendications 1, 9, 10 et 18).

Selon D2, le rapport molaire entre le radical stable et l'initiateur de radicaux libres devrait être compris entre 0.4 et 2.5, et de préférence de l'ordre de 1,3. En particulier, il ressort de l'enseignement de D2 qu'un rapport radical stable/initiateur élevé conduit à des polymères ayant une polydispersité réduite mais un poids moléculaire plus faible et influence négativement la vitesse de polymérisation et donc le taux de conversion à un temps donné (voir colonne 9, lignes 26 à 37 ; colonne 19, lignes 17 à 21).

- 5.4 Partant de D2, le problème technique que se propose de résoudre l'invention peut donc être vu dans la mise à disposition d'un procédé de polymérisation radicalaire permettant l'obtention de polymères à haut poids moléculaire ayant une polydispersité faible, tout en ayant une vitesse de réaction et un taux de conversion élevés et ce même à température de réaction relativement basse (c'est-à-dire entre 90 et 125°C).

5.5 Selon la demande ce problème est résolu en mettant en oeuvre un procédé de polymérisation tel que défini dans la revendication 1 ou dans la revendication 2, en présence de radicaux stables nitroxydes ayant les formules indiquées dans ces revendications.

5.6 A ce sujet la comparaison entre les exemples 4 et 5 représentatifs du procédé selon la revendication 1 et l'exemple 13 représentatif du procédé selon D2 (ces exemples ayant été mis en œuvre à des taux d'initiateur radicalaire similaires) montre que le procédé selon l'invention conduit après 7 heures de réaction à des polymères ayant une masse moléculaire plus élevée, une polydispersité plus faible et à un taux de conversion plus élevé et donc une vitesse de réaction plus importante même quand la température de réaction est abaissée à 110°C (voir exemple 5). De même, la comparaison entre l'exemple 9 représentatif du procédé selon la revendication 2 et l'exemple comparatif 16 représentatif du procédé selon D2 (ces exemples ayant été également mis en œuvre à des taux d'initiateur radicalaire voisins) conduit aux mêmes conclusions en termes de masse moléculaire, de polydispersité plus de taux de conversion et de vitesse de réaction en faveur du procédé selon l'invention.

5.7 Il est donc légitime, selon la chambre, de conclure que le problème technique est effectivement résolu par les procédés selon la revendication 1 et selon la revendication 2.

6. *Activité inventive*

6.1 Il reste à décider si pour l'homme du métier, l'objet revendiqué découle d'une manière évidente de l'art antérieur cité.

6.2 Comme indiqué plus haut dans le paragraphe 5.6, les procédés selon l'invention conduisent par rapport à celui décrit dans D2 à des polymères ayant une masse moléculaire plus élevée et une polydispersité plus faible et présentent une vitesse de réaction plus élevée et donc un taux de conversion plus important.

6.3 Dans ce contexte, il convient d'abord de constater que les exemples 4, 5, et 9 du brevet en cause ont été mis en œuvre avec un rapport molaire radical stable/initiateur de radicaux libres nettement plus élevé (environ 2,45) que celui utilisé dans les exemples 13 et 16 représentatifs du procédé de D2 (environ 1,25, c'est à dire très proche de la valeur recommandée dans le document D2 (voir D2, colonne 9, lignes 28 à 33)).

6.4 Si au vu de l'enseignement de D2 (voir paragraphe 5.3 ci-dessus), il pouvait certes être escompté que la polydispersité des polymères obtenus fût plus faible puisque le rapport radical stable/initiateur de radicaux libres était plus élevé, il ne pouvait, au contraire, être attendu de l'utilisation des radicaux nitroxydes spécifiques selon l'invention que les polymères obtenus eussent un poids moléculaire plus élevé et que la vitesse de réaction et donc le taux de conversion fussent plus importants, d'autant plus que le document D2 plaçait tous les radicaux stables, qu'ils fussent de type nitroxyde ou non, sur le même plan du point de vue

de leur utilisation potentielle dans un procédé de polymérisation radicalaire (voir D2, colonne 9, lignes 13 à 14).

- 6.5 Pour ces raisons, la chambre arrive donc à la conclusion que le document D2 ne peut en aucun cas suggérer les solutions proposées selon les revendications 1 et 2 du brevet en cause.
- 6.6 Quant au document D3, il n'est pas concerné par la fabrication de polymères à poids moléculaire élevé, puisqu'il se réfère à un procédé d'obtention de polymères ayant un poids moléculaire relativement faible, en fait des oligomères (voir D3, page 1, lignes 1 à 19). Il ne peut donc à ce titre être d'aucune assistance à la solution du problème technique. Cette conclusion ne saurait être altérée par le fait que dans un seul exemple (Exemple 34b) l'obtention avec un taux de conversion d'environ 20% d'un polymère ayant un masse moléculaire en nombre de 22 000 et une polydispersité de 1,45 en présence d'un radical nitroxyde ayant un groupe éthyle (masse moléculaire 29) soit décrite puisque rien n'indique dans D3 que, si l'on modifiait les conditions opératoires de cet exemple pour obtenir un taux de conversion plus élevé, la polydispersité ainsi que le poids moléculaire du polymère obtenu ne seraient point dégradés.
- 6.7 L'homme du métier ne trouverait également aucune suggestion de la solution proposée dans le brevet en cause dans les documents D1 et D4, qui bien que décrivant des composés nitroxydes, ne font pas la moindre allusion à leur utilisation dans un procédé de polymérisation radicalaire.

- 6.8 Il ressort de ces considérations que pour l'homme du métier, les procédés selon les revendications 1 et 2 ne découlent pas de manière évidente de l'art antérieur, et que donc l'objet de ces revendications implique une activité inventive.
- 6.9 Pour les mêmes raisons, la même conclusion s'applique a *fortiori* à l'objet des revendications dépendantes 3 à 23.
7. En résumé aucune des objections soulevées par la requérante ne saurait faire obstacle au maintien du brevet tel que délivré. En conséquence, le recours doit être rejeté.

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

Le recours est rejeté.

Le Greffier :

Le Président :

E. Görgmaier

R. Young