

Code de distribution interne :

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

**Liste des données pour la décision
du 29 février 2012**

N° du recours : T 0033/02 - 3.3.07

N° de la demande : 97402930.8

N° de la publication : 847801

C.I.B. : B01J 23/86, B01J 23/26,
C07C 17/20, C07C 19/08,
B01J 23/94

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :

Catalyseurs massiques à base de chrome et de nickel pour la fluoration en phase gazeuse d'hydrocarbures halogènes

Demanderesse :

ARKEMA FRANCE

Référence :

-

Normes juridiques appliquées :

CBE Art. 123(2), 54, 56

Mot-clé :

"Modifications admissibles (oui)"

"Nouveauté (oui)"

"Activité inventive (oui) - amélioration non évidente"

Décisions citées :

-

Exergue :

-



N° du recours : T 0033/02 - 3.3.07

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.07
du 29 février 2012

Requérante :
(Demanderesse)

ARKEMA FRANCE
420, rue d'Estienne d'Orves
F-92700 Colombes (FR)

Mandataire :

Dang, Doris
ARKEMA FRANCE
Département Propriété Industrielle
420, rue d'Estienne d'Orves
F-92705 Colombes Cedex (FR)

Décision attaquée :

Décision de la division d'examen de l'Office
européen des brevets postée le 24 juillet 2001
par laquelle la demande de brevet européen
n° 97402930.8 a été rejetée conformément aux
dispositions de l'article 97(1) CBE 1973.

Composition de la Chambre :

Président : J. Riolo
Membres : F. Rousseau
E. Dufrasne

Exposé des faits et conclusions

I. Le présent recours est dirigé contre la décision de la division d'examen, remise à la poste le 24 juillet 2001, rejetant la demande n° 97402930.8 publiée sous le numéro 0 847 801. La décision de rejet était rendue sur la base des revendications 1 à 17 telles que déposées, les revendications indépendantes 1 et 8 s'énonçant comme suit :

"1. Catalyseurs massiques à base de chrome et de nickel obtenus par imprégnation d'un oxyde de chrome III amorphe avec une solution d'un dérivé du nickel, caractérisés en ce que l'oxyde de chrome utilisé présente une surface BET supérieure à 150 m²/g et un volume poreux supérieur à 0,15 ml/g."

"8. Procédé de fluoration catalytique d'hydrocarbures halogénés, saturés ou oléfiniques, par HF en phase gazeuse, caractérisé en ce que l'on utilise un catalyseur selon l'une des revendications 1 à 7."

II. La décision était fondée sur l'absence d'activité inventive de l'objet des revendications 1 à 12 eu égard à la divulgation des documents EP-A-0 546 883 (D1) et WO 93/25507 (D2). D'après les motifs de la décision, l'état de la technique le plus proche était constitué par D1, qui enseignait la préparation de catalyseurs massiques à base d'oxyde de chrome III et d'oxyde de nickel pour la fluoration catalytique d'hydrocarbures halogénés par HF en phase gazeuse, lesdits catalyseurs étant préparés à partir d'un gel d'hydroxydes de chrome III et de nickel II. Les catalyseurs revendiqués ne différaient du catalyseur selon l'exemple 9 de D1

qu'en ce qu'ils étaient obtenus par imprégnation d'un oxyde de chrome III. Or, la demanderesse n'avait pas montré en l'absence d'exemples comparatifs concluants quel était l'effet technique engendré par l'utilisation d'un autre mode de préparation des catalyseurs que celui utilisé dans D1. Au vu de D2 qui divulguait des catalyseurs obtenus par imprégnation d'un oxyde de chrome III avec au moins un métal de transition tel que le nickel et leur utilisation pour la fluoration catalytique d'hydrocarbures halogénés par HF en phase gazeuse, le recours à l'imprégnation d'un oxyde de chrome III était pour l'homme du métier une alternative évidente au procédé de préparation de catalyseurs divulgué dans D1. L'objet des revendications 1 à 12 était donc dépourvu d'activité inventive et la demande était en conséquence rejetée.

III. Outre les documents D1 et D2, le rapport de recherche citait les documents suivants :

D3: EP-A-0 514 932

D4: EP-A-0 657 408 et

D5: GB-A-1 055 346.

IV. Avec le mémoire exposant les motifs du recours transmis par télécopie du 29 novembre 2001, il était requis par la demanderesse (ci-après la requérante) que la décision attaquée soit annulée et qu'un brevet soit délivré sur la base d'un jeu de revendications 1 à 15 amendé annexé audit mémoire, auquel étaient également joints des tests comparatifs complémentaires.

V. Dans une notification envoyée en annexe à une citation à comparaître en procédure orale le 28 janvier 2011, la

Chambre souleva des objections pour défaut de nouveauté vis-à-vis des exemples 1 à 6 de D1 et manque d'activité inventive vis-à-vis du document D2.

- VI. Un report de la procédure orale pour répondre aux objections de la Chambre, notamment sur la base de résultats expérimentaux souhaitant être présentés, fut sollicité par télécopie du 22 décembre 2010, la requérante demandant par courrier du 5 janvier 2011 la poursuite de la procédure sur la base d'un nouveau jeu de 16 revendications annexé audit courrier. Dans un entretien téléphonique le 14 janvier 2011, la position de la Chambre selon laquelle ni la nouveauté des revendications 7 à 16 vis-à-vis du document D1, ni l'activité inventive au vu de D2 de l'objet de la revendication 1, ne pouvaient être reconnues fut communiquée à la requérante. Une nouvelle date pour la procédure orale fut fixée au 15 juin 2011.
- VII. Par courrier du 31 mai 2011 la requérante fournit 3 nouveaux jeux de revendications remplacés, suite à un entretien téléphonique du 9 juin 2011, par un nouveau jeu de 14 revendications soumis le 10 juin 2011 en tant que requête principale. La procédure orale fixée pour le 15 juin 2011 fut alors annulée et la procédure continuée par écrit afin d'adapter la description dans un délai de 4 mois sollicité par la requérante.
- VIII. Dans un entretien téléphonique du 14 novembre 2011, la requérante était informée que des passages de la description autres que ceux des pages 2 et 3 soumises par courrier du 17 octobre 2011 nécessitaient une adaptation au jeu de revendications en vigueur. Il lui était accordé un délai de deux mois à compter de la

signification du compte rendu de l'appel téléphonique pour y remédier.

IX. De nouvelles pages 1 à 4, 6 et 8 dans une version portant des corrections manuscrites, ainsi que des pages 1 à 4 et 6 dans une version entièrement dactylographiée furent soumises par courrier du 21 décembre 2011. Suite à un entretien téléphonique du 13 février 2012 dans lequel il était souligné que des passages de la description n'avaient pas encore été correctement adaptés ou que des erreurs avaient été introduites dans les pièces nouvellement dactylographiées, la requérante soumit par courrier du 13 février 2012 de nouvelles pages 1, 2 et 4 de la description portant des corrections manuscrites, ainsi qu'une version à nouveau dactylographiée de celles-ci et de nouvelles versions des revendications 1 à 14 comportant une modification de la revendication 1 et de la revendication 14 dans une version entièrement dactylographiée et dans une version portant des corrections manuscrites. L'unique revendication indépendante de ce jeu s'énonce de la manière suivante dans la version portant des corrections manuscrites :

"1. Procédé de fluoration catalytique de perchloroéthylène par HF en phase gazeuse, comprenant : la préparation d'un catalyseur massique à base de chrome et de nickel comprenant l'imprégnation d'un oxyde de chrome III amorphe avec une solution d'un dérivé du nickel, caractérisé en ce que l'oxyde de chrome utilisé présente une surface BET supérieure à 150 m²/g et un volume poreux (défini comme le volume des pores de rayon inférieur à 7,5 µm) supérieur à 0,15 ml/g, et en ce que le rapport

atomique Ni/Cr est compris entre 0,02 et 0,4; et l'utilisation de ce catalyseur pour la dite fluoration."

- X. Les arguments de la requérante pertinents pour la décision ont été essentiellement les suivants :
- a) La revendication 1 se basait sur les revendications d'origines 17, 6 et 1.
 - b) Compte tenu de la première étape du procédé revendiqué comprenant la préparation du catalyseur par imprégnation d'un support spécifique d'oxyde de chrome avec un composé du nickel, qui n'était pas divulguée par l'art antérieur, le procédé de fluoration du perchloroéthylène revendiqué était nouveau.
 - c) En ce qui concerne l'activité inventive, D1 ne pouvait représenter l'état de la technique le plus proche, celui-ci étant constitué par D2, qui décrivait de manière générale un catalyseur pour les réactions de fluoration comprenant un composé à base de chrome et un métal de transition choisi dans un groupe comprenant le nickel. L'exemple 1 de D2 divulguait en particulier un catalyseur obtenu par imprégnation d'un oxyde de chrome III par un composé du nickel, le rapport Ni/Cr étant de l'ordre de 0,04. D2 n'apportait cependant aucun enseignement relatif à la surface spécifique et au volume poreux de l'oxyde de chrome devant être imprégné. L'exemple 6 et l'exemple comparatif 11 de la demande, qui respectivement utilisaient les catalyseurs de l'exemple 1 et de l'exemple comparatif 5, montraient

que les critères de surface BET et de porosité, tels que définis dans la revendication 1 permettaient d'obtenir une amélioration du taux de conversion du perchloréthylène et de la sélectivité envers le pentafluoroéthane lorsque le rapport Ni/Cr avait la valeur 0,05. L'exemple comparatif 18 et l'exemple 17 des tests comparatifs complémentaires montraient le même phénomène pour un rapport Ni/Cr de 0,4. Le problème technique résolu était donc d'améliorer le taux de conversion du perchloréthylène et la sélectivité envers le pentafluoroéthane. Cet effet ne pouvait être déduit de l'art antérieur. L'homme du métier, en particulier, ne consulterait pas D1 et ne serait pas en mesure d'utiliser un quelconque enseignement à partir de ce document, qui concernait un autre procédé de fabrication des catalyseurs de type sol-gel, fort différent de D2. Bien que des mesures de surface BET soient données pour les catalyseurs exemplifiés dans D1, l'homme du métier n'aurait aucune raison d'en déduire quoi que ce soit quant à la surface BET de l'oxyde de chrome devant être utilisé dans une approche reposant sur l'imprégnation. D'ailleurs, aucun effet de la surface BET du catalyseur obtenu par procédé sol-gel sur la sélectivité de la réaction de fluoration n'apparaissait à la lecture de D1. De plus, le document D3 ne décrivait pas la préparation de catalyseurs comprenant du nickel. Ce document ne donnait aucune indication quant à une quelconque influence de la surface spécifique BET ou du volume poreux de l'oxyde de chrome sur la sélectivité lors d'une réaction de fluoration. Même si un lien avait été apparent dans D3 entre surface spécifique BET et sélectivité de la fluoration, ce qui n'était pas le

cas, ce lien ne vaudrait que pour un catalyseur brut non imprégné. D3 ne pouvait donc indiquer quelle serait l'influence de la surface spécifique BET ou du volume poreux de l'oxyde de chrome sur la sélectivité d'un catalyseur obtenu par imprégnation avec un composé du nickel. Enfin, D4 s'intéressait à la fluoration au moyen de catalyseurs sous forme cristallisée, alors que l'invention utilisait un oxyde de chrome sous forme amorphe. Par ailleurs, D4 ne décrivait pas l'imprégnation d'un oxyde de chrome avec un composé du nickel et ne contenait pas d'enseignement quant à l'effet de la surface BET sur la spécificité de la fluoration. En conclusion, l'homme du métier partant de D2 et cherchant à améliorer la sélectivité envers le pentafluoroéthane dans la réaction de fluoration du perchloroéthylène n'aurait pas été incité par l'état de la technique à aboutir à l'invention revendiquée. Une activité inventive devait donc être reconnue.

XI. La requérante sollicite l'annulation de la décision de rejet et la délivrance d'un brevet sur le fondement des revendications 1 à 14 soumises par courrier daté du 13 février 2012, ainsi que des pages suivantes de la description :

- 1, 2 et 4 soumises par courrier du 13 février 2012,
- 3 et 6 soumises par courrier du 21 décembre 2011, et
- 5 et 7 telles que déposées.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.

Modifications

2. La revendication 1 concerne un procédé de fluoration catalytique du perchloroéthylène par HF en phase gazeuse en présence d'un catalyseur massique à base de chrome et de nickel dans un rapport atomique Ni/Cr compris entre 0,02 et 0,4, le procédé incluant la préparation dudit catalyseur, qui comprend l'imprégnation d'un oxyde de chrome III amorphe poreux avec une solution d'un dérivé du nickel. L'oxyde de chrome utilisé présente une surface BET supérieure à 150 m²/g et un volume poreux supérieur à 0,15 ml/g défini comme le volume des pores de rayon inférieur à 7,5 µm.

3. Dans les pièces de la demande telle que déposée, la revendication 17 se réfère à la revendication 8, définissant ainsi un procédé de fluoration catalytique du perchloroéthylène par HF en phase gazeuse utilisant un catalyseur selon l'une des revendications 1 à 7. La revendication dépendante 6 d'origine définit un mode préférentiel de réalisation d'un catalyseur selon la revendication 1 dans lequel un rapport atomique Ni/Cr compris entre 0,02 et 0,4 est utilisé pour imprégner un oxyde de chrome III amorphe avec une solution d'un dérivé du nickel, l'oxyde de chrome utilisé présentant une surface BET supérieure à 150 m²/g et un volume poreux supérieur à 0,15 ml/g. Le procédé selon la nouvelle revendication 1 se base ainsi dans les pièces de la demande telle que déposée sur le procédé de fluoration du perchloroéthylène divulgué dans la revendication 17, limité au choix préférentiel du rapport atomique Ni/Cr compris entre 0,02 et 0,4 défini dans la revendication 6. Cette combinaison de caractéristiques correspond aux

modes préférentiels de réalisation divulgués dans les exemples 6 à 9 de la demande telle que déposée. Quant à la définition du volume poreux, celle-ci est donnée page 2, lignes 8-9 de la demande telle que déposée. Par conséquent, conformément aux dispositions de l'article 123(2) CBE, l'objet de la revendication 1 telle que modifiée ne s'étend pas au-delà du contenu de la demande telle que déposée. Les caractéristiques additionnelles définies dans les revendications dépendantes 2 à 14 sont divulguées dans les revendications 2 à 5, 7 et 9 à 16 de la demande telle que déposée. Les revendications 2 à 14 remplissent donc également les conditions de l'article 123(2) CBE.

Nouveauté

4. Le document D1 concerne un procédé de fluoration par HF en phase gazeuse d'hydrocarbures halogénés, saturés ou oléfiniques. La fluoration du perchloroéthylène, utilisant un catalyseur à base de nickel et de chrome y est divulguée, mais ledit catalyseur préparé par un procédé sol-gel, n'est pas divulgué comme pouvant être également obtenu par imprégnation d'un oxyde de chrome amorphe poreux avec une solution d'un dérivé du nickel. De plus, l'utilisation d'un catalyseur possédant un rapport atomique Ni/Cr compris entre 0,02 et 0,4 pour la fluoration du perchloroéthylène n'est pas divulguée dans ce document.

5. L'art antérieur selon le document D2 concerne un procédé de fluoration en phase vapeur par HF, le catalyseur utilisé pouvant être obtenu par imprégnation d'un oxyde de chrome par un métal de transition qui peut être un dérivé du nickel (voir page 2, lignes 21-28, page 4,

lignes 10-12, exemple 1). Le document D2 ne divulgue cependant pas la surface BET et le volume poreux de l'oxyde de chrome requis par la revendication 1 présente, ni l'utilisation d'un catalyseur possédant un rapport atomique Ni/Cr compris entre 0,02 et 0,4 pour la fluoration du perchloroéthylène.

6. Le document D3 décrit la fluoration en phase gazeuse d'hydrocarbures halogénés utilisant comme catalyseur un oxyde de chrome obtenu par précipitation de l'hydroxyde de chrome et une étape de frittage, sans que l'utilisation conjointe d'un autre métal de transition, ni *a fortiori* celle du nickel, soit divulguée.
7. Le document D4 concerne la fluoration en phase gazeuse d'hydrocarbures halogénés saturés utilisant comme catalyseur un oxyde de chrome à l'état cristallisé obtenu par un procédé sol-gel. Il ne divulgue donc ni la fluoration du perchloroéthylène, ni la préparation d'un catalyseur mixte au chrome obtenu par imprégnation d'un oxyde de chrome poreux par une solution d'un autre métal catalytiquement actif.
8. Finalement, D5 ne concerne pas un procédé de fluoration.
9. Par conséquent, l'objet des revendications 1 à 14 présentes est nouveau au sens de l'article 54 CBE.

Activité inventive

Etat de la technique le plus proche

10. Il découle de l'analyse des documents cités dans la procédure d'examen donnée aux points 4 à 8 précédents

que seuls les documents D1, D2 et D3 concernent un procédé de fluoration du perchloroéthylène par HF en phase gazeuse. Les procédés divulgués dans ces documents utilisent tous un catalyseur à base de chrome, mais seul le document D2 envisage l'utilisation d'un catalyseur mixte chrome-nickel préparé par imprégnation d'un support en chrome avec un composé du nickel. Dans ces conditions, le document D2 constitue l'état de la technique le plus proche, dont il convient de partir pour analyser l'activité inventive.

Problème résolu et solution

11. Il ressort des exemples 6 à 9 de la demande, conformes à l'invention revendiquée, ainsi que des exemples comparatifs 10 et 11, qu'il est attaché dans le procédé de fluoration du perchloroéthylène revendiqué une importance non seulement au taux de transformation de ce composé, mais également à la sélectivité en pentafluoroéthane (F125). Une comparaison des résultats obtenus pour l'exemple 6 et l'exemple comparatif 11 rend crédible pour un ratio atomique Ni/Cr de l'ordre de 0,05 que le choix d'un support d'oxyde de chrome III amorphe possédant un volume poreux et une surface spécifique tels que définis dans la revendication 1 favorise à la fois le taux de transformation du perchloroéthylène et la sélectivité en pentafluoroéthane. Ceci est en outre confirmé pour un ratio atomique Ni/Cr de l'ordre de 0,4 par les essais complémentaires 17 (selon l'invention) et 18 (comparatif) déposés avec le mémoire exposant les motifs du recours. Par rapport au procédé de fluoration du perchloroéthylène par HF en phase gazeuse en présence d'un catalyseur obtenu par imprégnation d'un oxyde de chrome III amorphe avec un dérivé du nickel, qui est

envisagé dans D2, le problème technique résolu par le procédé présentement revendiqué peut donc être vu dans l'optimisation du taux de conversion et de la sélectivité en pentafluoroéthane. La solution à ce problème réside dans le choix pour l'étape d'imprégnation d'un oxyde de chrome III amorphe présentant une surface BET supérieure à 150 m²/g et un volume poreux supérieur à 0,15 ml/g défini comme le volume des pores de rayon inférieur à 7,5 µm.

Evidence de la solution

12. Il reste encore à déterminer s'il était évident pour l'homme du métier au regard de l'état de la technique disponible de sélectionner pour la préparation du catalyseur un tel support d'oxyde de chrome III amorphe afin de résoudre le problème ci-dessus défini. En ce qui concerne l'état de la technique le plus proche, celui-ci ne divulgue ni le volume poreux et la surface BET du support d'oxyde de chrome à imprégner, ni *a fortiori* les effets de telles caractéristiques sur la sélectivité en pentafluoroéthane lors de la fluoration du perchloroéthylène.

13. Quant au document D1, outre le fait qu'il n'envisage pas la préparation d'un catalyseur par imprégnation d'un support poreux de chrome amorphe avec un composé du nickel, celui ne permet pas d'apprécier la sélectivité des catalyseurs qui y ont été employés lors de la fluoration du perchloroéthylène, des valeurs de sélectivité étant uniquement données pour la fluoration du chloro-1 trifluoro-2,2,2 éthane.

14. Si le document D3 indique la surface spécifique des catalyseurs d'oxyde de chrome utilisés pour les réactions de fluoration, celui-ci n'enseigne pas quelle serait son influence sur la sélectivité en pentafluoroéthane si les catalyseurs devaient être utilisés pour la fluoration du perchloroéthylène, qui de plus est, dans le cadre de la modification du support d'oxyde de chrome par imprégnation avec un autre composé catalytiquement actif qui n'est nullement enseignée dans D3.
15. Concernant D4 et D5, ces documents n'ont pas trait à un procédé de fluoration du perchloroéthylène.
16. Par conséquent, aucun des documents cités ne suggère le choix d'un support d'oxyde de chrome III amorphe possédant un volume poreux supérieur à 0,15 ml/g et une surface BET supérieure à 150 m²/g afin d'optimiser pour la fluoration du perchloroéthylène le taux de conversion et la sélectivité en pentafluoroéthane. L'objet de la revendication 1 ne découle donc pas d'une manière évidente de l'état de la technique.
17. En conséquence, l'objet de la revendication 1, et pour les mêmes raisons celui des revendications dépendantes 2 à 14, implique une activité inventive telle que définie à l'article 56 CBE.
18. La description a été mise en conformité avec les revendications amendées.

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

1. La décision attaquée est annulée.
2. L'affaire est renvoyée devant la première instance afin de délivrer un brevet sur la base des documents suivants :
 - Revendications 1 à 14 soumises par courrier du 13 février 2012, dans leur version comprenant les modifications sous forme manuscrite
 - Description :
 - pages 5 et 7 telles que déposées; et
 - pages 1, 2 et 4 soumises par courrier du 13 février 2012, pages 3 et 6 soumises par courrier du 21 décembre 2011, dans leurs versions comprenant les modifications sous forme manuscrite.

Le Greffier :

Le Président :

S. Fabiani

J. Riolo