

Code de distribution interne :

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

**Liste des données pour la décision
du 13 février 2007**

N° du recours : T 0036/03 - 3.3.07

N° de la demande : 98942751.3

N° de la publication : 1011858

C.I.B. : B01J 20/18

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :

Absorbants zéolitiques agglomérés leur procédé d'obtention et leur utilisation pour l'adsorption de paraxylène à partir de coupes de C₈ aromatiques

Demandeur :

CECA S.A., et al

Opposant :

-

Référence :

-

Normes juridiques appliquées :

CBE Art. 54, 56, 84

Mot-clé :

"Clarté (non) (requête principale, première et deuxième requêtes subsidiaires)"

"Nouveauté (oui) (troisième requête subsidiaire)"

"Activité inventive (oui) (troisième requête subsidiaire)"

Décisions citées :

-

Exergue :

-



N° du recours : T 0036/03 - 3.3.07

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.07
du 13 février 2007

Requérant : CECA S.A.
4-8, Cours Michelet,
La Défense 10
F-92800 Puteaux (FR)

Mandataire : Treuil, Claude
ARKEMA FRANCE
Département Propriété Industrielle
4-8 cours Michelet
La Défense 10
F-92091 Paris La Défense (FR)

Décision attaquée : Décision de la division d'examen de l'Office européen des brevets postée le 7 août 2002 par laquelle la demande de brevet européen No 98942751.3 a été rejetée conformément aux dispositions de l'article 97(1) CBE.

Composition de la Chambre :

Président : S. Perryman
Membres : F. Rousseau
B. ter Laan

Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet européen n°98 942 751.3, correspondant à la demande internationale publiée sous le n° WO 99/10096, a été rejetée par décision de la division d'examen du 07 août 2002, au motif qu'elle n'impliquait pas d'activité inventive vis-à-vis de l'art antérieur le plus proche, représenté selon elle par le document :

(1) US-A-3 558 730.

La division d'examen a également basé sa décision sur les documents :

(2) US-A-3 130 007

(3) US-A-2 882 243

(4) US-A-2 882 244

(5) US-A-2 985 589

(6) EP-A-0 531 191

(7) US-A-3 558 732

(8) US-A-3 663 638 et

(9) US-A-3 878 127.

II. Le 19 septembre 2002, les co-demandeurs (ci-après les requérants) ont formé un recours contre cette décision en acquittant la taxe prescrite le même jour.

Avec leur mémoire exposant les motifs du recours, reçu le 13 décembre 2002, les requérants ont déposé deux jeux de revendications au titre de requête principale et requête subsidiaire.

III. En réaction à une communication de la Chambre indiquant les points à discuter lors de la procédure orale, les requérants ont déposé par télécopie le 30 janvier 2007 deux nouveaux jeux de revendications à titre de requête principale et de requête subsidiaire. Ils ont également soumis un rapport d'essais daté du 29 janvier 2007.

IV. La procédure orale a eu lieu le 13 février 2007 au cours de laquelle les requérants ont soumis quatre nouveaux jeux de revendications à titre de requête principale et de requêtes subsidiaires 1 à 3.

Le jeu selon la requête principale, ainsi que les jeux selon les requêtes subsidiaires 1 à 3, comprennent une revendication 1 qui s'énonce comme suit :

"1. Adsorbants zéolitiques agglomérés avec un liant comprenant au moins 70% et de préférence au moins 80% de faujasite de rapport atomique Si/Al tel que $1 \leq \text{Si/Al} \leq 1,15$ dont les sites échangeables sont occupés au moins à 70% par des ions baryum et éventuellement jusqu'à 30 % par du potassium (le complément éventuel étant généralement assuré par des ions alcalins ou alcalino-terreux autres que le baryum et le potassium) et au plus 30%, de préférence au plus 20%, de liant."

Le jeu selon la requête principale et le jeu selon la première requête subsidiaire comprennent en outre des revendications 3 et 4 qui s'énoncent :

"3. Adsorbants selon la revendication 1 ou 2 agglomérés avec un liant zéolitisable, de préférence une argile de la famille du kaolin telle que la kaolinite ou l'halloysite".

"4. Adsorbants selon la revendication 3 comprenant au moins 85% et de préférence au moins 90% de faujasite de rapport atomique Si/Al tel que $1 \leq \text{Si/Al} \leq 1,15$ et au plus 15% et avantageusement au plus 10% de liant susceptibles d'être obtenus avec une étape de zéolitisation du liant zéolitisable."

Les revendications 2 et 3 de la seconde requête subsidiaire portent également sur les adsorbants définis dans les revendications 3 et 4 de la requête principale.

Le jeu de revendications à la base de la troisième requête subsidiaire diffère de celui à la base de la requête principale en ce que les revendications 2, 4 et 10 ont été supprimées. Elle comprend, outre la revendication 1 énoncée ci-dessus, trois autres revendications indépendantes qui s'énoncent comme suit :

"6. Procédé d'obtention des adsorbants tels que définis dans l'une quelconque des revendications 1 à 5 comprenant les étapes suivantes :

- a/ agglomération de poudre de zéolite avec un liant,
- b/ calcination de l'aggloméré
- c/ zéolitisation éventuelle du liant par immersion de l'aggloméré dans une liqueur alcaline, soude ou mélange de soude et de potasse,
- d/ échange au baryum et éventuellement au potassium
- e/ activation."

"8. Procédé de récupération de paraxylène à partir de coupes d'isomères C_8 aromatiques en phase liquide, par adsorption du paraxylène au moyen d'un adsorbant selon

l'une quelconque des revendications 1 à 5 en présence d'un désorbant."

"12. Procédé de récupération de paraxylène à partir de coupes d'isomères C₈ aromatiques en phase gazeuse, par adsorption du paraxylène au moyen d'un adsorbant selon l'une quelconque des revendications 1 à 5 en présence d'un désorbant."

V. Les arguments des requérants peuvent se résumer ainsi :

a) Les adsorbants obtenus dans le document (9) sont synthétisés à partir d'une zéolite X sous forme sodium. Le document (9) se réfère pour la synthèse de ces zéolites au document (4) qui est le seul document à divulguer explicitement leur synthèse. Les requérants ont fait valoir, en particulier au cours de la procédure orale et se référant au rapport d'essais daté du 29 janvier 2007, que la méthode de synthèse selon le document (4) mène, lorsqu'on cherche à synthétiser des zéolites X possédant un rapport Si/Al tendant vers 1, non pas à de la zéolite X possédant le rapport Si/Al recherché, mais à une zéolite X de rapport Si/Al plus élevé en mélange avec une zéolite A. Lorsqu'on essaye de produire avec les conditions de synthèse décrites dans le document (4) une zéolite de type X possédant un rapport atomique Si/Al voisin de 1, on obtient uniquement de la zéolite A. Au cours de l'audience, les experts des requérants ont déclaré que suivant la méthode divulguée dans le document (4), il ne pourrait être possible de former des zéolites X que pour des rapports atomiques Si/Al allant jusqu'à 1,06. La

nouveauté vis-à-vis du document (9) devrait donc être reconnue.

- b) Des arguments similaires ont été présentés concernant la nouveauté vis-à-vis du document (8). Il a été soutenu en sus que les adsorbants XVI à XIX, dont l'analyse chimique avait été indiquée dans le tableau V du document (8), comprenaient à la fois une zéolite X et un liant dont la nature et la quantité ne sont pas connues. L'analyse chimique de ces adsorbants ne permettrait donc pas de déterminer le rapport atomique Si/Al des zéolites qu'ils contiennent.
- c) Concernant l'activité inventive, les requérants ont fait valoir que le problème technique résolu par les adsorbants revendiqués vis-à-vis du document (9) pouvait être vu, ainsi qu'indiqué page 5, lignes 7 à 14 et page 8, lignes 18 à 21 de la demande telle que déposée, dans l'amélioration de la séparation du paraxylène contenu dans des coupes d'hydrocarbures aromatiques en C₈, en particulier celles riches en éthylbenzène, moyennant une consommation de désorbant raisonnable. Cet effet serait mis en évidence par l'exemple 1 de la demande, qui utilise un adsorbant témoin considéré représenter l'enseignement du document (9), et les exemples 2 à 9 de la demande utilisant un adsorbant tel que revendiqué, le taux d'échange en baryum des adsorbants des exemples 1 à 7 et 9 étant selon les requérants de 95±2 %. Les requérants ont également souligné que l'étape de zéolitisation du liant, telle que pratiquée dans certains des exemples, conduit à la formation d'une zéolite de même type que celle présente à l'origine en mélange avec le liant. Il a été soutenu par

ailleurs que les résultats des mesures de sélectivité en conditions dynamiques indiqués dans le document (9) et les résultats obtenus dans la demande par des mesures de sélectivité en conditions statiques ne pouvaient, en l'absence de corrélation entre ces deux méthodes, être directement comparés. L'utilisation des adsorbants selon l'invention présente dans le but d'améliorer la sélectivité du paraxylène par rapport à l'éthylbenzène ne saurait être suggérée par l'art antérieur.

VI. Les requérants ont conclu à l'annulation de la décision attaquée et la délivrance d'un brevet européen sur la base du jeu principal ou de l'un des jeux subsidiaires 1 à 3 de revendications fournis pendant la procédure orale.

VII. La décision a été prononcée à l'audience.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.

Requête principale

2. La revendication 4 de la requête principale définit que les adsorbants sont susceptibles d'être obtenus par une étape de zéolitisation du liant zéolitisable. La zéolitisation du liant, qui produit la même zéolite que celle présente initialement dans l'aggloméré, conduit à une augmentation de la quantité de faujasite présente dans l'adsorbant. Il n'est cependant pas clair si la revendication 4 porte sur des adsorbants qui sont susceptibles d'être obtenus après zéolitisation d'un

matériau comprenant au moins 85% de faujasite et au plus 15% de liant ou sur des adsorbants comprenant au moins 85% de faujasite et au plus 15% de liant qui ont pu être obtenus par zéolitisation d'une partie du liant initialement présent dans un quantité supérieure. Il n'est donc pas clair si la revendication 4 porte sur des adsorbants possédant, suite à l'étape de zéolitisation, une concentration en faujasite nécessairement supérieure à 85% ou sur des adsorbants possédant une concentration en faujasite pouvant être égale à 85%. La revendication 4 étant ambiguë quant à la quantité de faujasite présente dans l'adsorbant, elle ne satisfait pas aux critères de l'article 84 CBE. Il ne peut donc être donné droit à la requête principale.

Première et seconde requête subsidiaire

3. La revendication 4 de la première requête subsidiaire et la revendication 3 de la seconde requête subsidiaire portant sur le même objet que celui défini à la revendication 4 de la requête principale, il ne peut, pour les mêmes raisons que celles exposées au point 2 ci-dessus, être donné droit à la première et à la seconde requête subsidiaire.

Troisième requête subsidiaire

4. *Modifications*

Les revendications de la troisième requête subsidiaire n'appellent pas d'objections au titre de l'article 123(2) CBE. En particulier, l'insertion dans la revendication 1 de la caractéristique définissant la quantité de liant comprise dans les adsorbants zéolitiques se base sur le

passage page 3, lignes 10 à 12 de la demande telle que déposée.

5. *Nouveauté*

5.1 Les revendications de la troisième requête subsidiaire ont toutes pour caractéristique commune l'adsorbant zéolitique aggloméré défini à la revendication 1. Celui-ci comprend un liant et au moins 70% de faujasite de rapport atomique Si/Al tel que $1 \leq \text{Si/Al} \leq 1,15$ dont les sites échangeables sont occupés au moins à 70% par des ions baryum.

5.2 Parmi les documents cités dans la décision attaquée, seuls les documents (9) et (8), qui concernent des adsorbants comprenant une faujasite échangée au baryum dont le rapport atomique Si/Al est inférieur ou égal à 1,5 (zéolite X) et qui également mentionnent l'utilisation d'un liant, sont susceptibles d'anticiper l'objet des revendications présentes. Il est en particulier noté que les documents (1) et (7), bien qu'ils concernent également une faujasite échangée au baryum, ne divulguent cependant pas l'utilisation d'un liant.

5.3 *Nouveauté au regard du document (9)*

Rapport atomique Si/Al des faujasites utilisées dans le document (9)

5.3.1 Les adsorbants divulgués dans le document (9) sont d'après sa revendication 1 obtenus à partir d'un précurseur comprenant une zéolite de type X ou Y au sodium, c'est à dire une zéolite possédant la structure

de la faujasite, et une matière amorphe qui selon la colonne 1, lignes 53 à 55, sert de liant. Les zéolites de type X ou Y utilisées dans le document (9) sont selon le passage colonne 6, lignes 14 à 17, celles définies dans le document (4) pour les zéolites de type X et celles définies dans le document (2) pour les zéolites de type Y. Les faujasites de type Y possèdent, tel qu'indiqué dans le document (9), colonne 6, lignes 31 à 38, un rapport atomique Si/Al supérieur à 1,5 et donc supérieur à celui défini dans la revendication 1 présente. Les faujasites de type X décrites dans le document (9) possèdent par contre selon le passage de la colonne 6, lignes 18 à 30, la formule empirique suivante : $(0.9 \pm 0.2)M_{2/n}O:Al_2O_3:(2.5 \pm 0.5)SiO_2:yH_2O$ qui correspond exactement à celle indiquée dans le document (4), colonne 3, lignes 27 à 34. Les faujasites de type X décrites dans le document (9) possèdent donc à première vue un rapport atomique Si/Al compris entre 1.00 et 1.5, qui par conséquent se recoupe avec celui défini dans les revendications présentes, les bornes inférieures des deux domaines de valeurs étant identiques.

5.3.2 Le document (9) ne donnant pas plus de précision sur les zéolites X devant être utilisées, il est nécessaire d'analyser la divulgation du document (4) auquel il est fait référence dans le document (9). Selon le document (4) une zéolite X est un matériau possédant la structure cristalline dont le spectre de diffraction aux rayons X montre des pics tels que définis dans les tableaux A et B, colonnes 8 et 9 de ce document. Selon la colonne 4, lignes 54 à 55, ainsi que confirmé par le passage commençant à la colonne 5, ligne 37, il est critique afin d'obtenir cette structure de bien choisir les proportions des réactants SiO_2 , Al_2O_3 , Na_2O et H_2O .

Lorsque les proportions indiquées dans la revendication 19 et à la colonne 5, lignes 37 à 43, en particulier des rapports molaires $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O}/\text{SiO}_2$ et $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ compris respectivement entre 3 et 5, 1.2 et 1.5 et entre 35 et 60, ne sont pas respectés, une zéolite X n'est pas obtenue seule, mais en mélange avec une autre forme cristalline d'un aluminosilicate sodique (voir colonne 5, lignes 44 à 47). Le document (4) (voir en particulier la colonne 2, lignes 49 à 64 et la colonne 3, lignes 10 à 26) explique également la manière dont la formule empirique reprise dans le document (9) a été déterminée. Selon ce passage, la valeur du rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ de 2,5 est en fait une valeur moyenne obtenue suite à de nombreuses analyses, cette valeur variant dans le domaine 2.5 ± 0.5 . Ceci indique que le domaine indiqué dans le document (4) pour la quantité équivalente en silice contenue dans les zéolites X, c'est à dire 2.5 ± 0.5 , ne définit pas nécessairement un domaine indiquant un ensemble de zéolites X pures dont la composition peut être intentionnellement et exactement atteinte suivant les besoins, mais plutôt des variations approximatives de compositions obtenues lorsqu'on cherche à obtenir une zéolite possédant une structure cristalline de type X. Les mêmes conclusions s'appliquent donc au document (9), qui définit la zéolite X par référence au document (4). Elle sont cohérentes avec le fait que la zéolite utilisée dans les exemples du document (9) possède un rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ de l'ordre de 2,5.

5.3.3 Les conclusions pouvant être tirées du document (4) selon lesquelles les valeurs du rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ tendant vers 2,0 ne sont pas des valeurs exactes, mais approximatives, sont également corroborées

par les essais fournis par les requérants par télécopie en date du 29 janvier 2007. Ceux-ci montrent que la synthèse de zéolites X sodiques possédant un rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ plus faible que 2,5 et donc nécessitant des rapports molaires $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ initiaux moins élevés que ceux utilisés dans le document (4), conduit graduellement à une diminution de la quantité de zéolite X obtenue au profit de la synthèse de zéolite de type A, celle-ci étant de plus en plus favorisée lorsque le rapport initial $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ tend vers 2,0. Pour des rapports molaires $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ de 2,24 et 2,12, on obtient respectivement que 86% et 74% de zéolite X. Lorsqu'on part d'un rapport molaire voisin de 2,00, on obtient uniquement de la zéolite A.

5.3.4 Au vu de ce qui précède, on ne peut par conséquent pas affirmer, qu'il était possible de mettre en œuvre à sa date de publication l'enseignement technique du document (4), selon lequel des zéolites de type X sous forme sodium uniquement pouvaient posséder un rapport atomique Si/Al de 1,0. On en déduit également que le document (9) qui utilise les zéolites de type X sous forme sodium telles que définies par référence au document (4) ne divulgue pas pour l'homme du métier un adsorbant solide obtenu à partir d'une zéolite X de rapport atomique Si/Al égal à 1.0.

5.3.5 De plus, bien qu'il eut été possible selon l'opinion des requérants de mettre en œuvre l'enseignement du document (4) et donc du document (9) pour des rapports atomiques Si/Al d'au moins 1,06, le document (9) ne décrit, à part la valeur 1,0 ne pouvant être mise en œuvre (cf. *supra*) aucun rapport atomique Si/Al inférieur ou égal à 1,15. Le document (9) ne divulgue donc pas une

zéolite X possédant un rapport atomique Si/Al compris dans la plage de valeurs définie par la revendication 1 présente.

Taux d'échange au baryum utilisé dans le document (9)

5.3.6 Les faujasites utilisées dans le document (9) sont échangées complètement avec des ions baryum ou baryum et potassium (revendication 1, colonne 8, lignes 46 à 50). Lorsque elles sont échangées à la fois par des ions baryum et potassium, le rapport en poids de ces derniers est compris entre 1,5 et 200 (revendication 6, colonne 8, lignes 28 à 33). Les adsorbants A, B et C du tableau 4 utilisent une faujasite de rapport atomique Si/Al de 1,25 et des rapports en poids Ba/K respectifs de 3,6, 5,0 et 54,1, qui correspondent, compte tenu de l'échange complet des sites échangeables, à des taux d'occupation par des ions baryum des sites échangeables de l'ordre de 58, 69 et 86%. Le document (9) considère donc des taux d'échange au baryum non seulement correspondant, mais également inférieurs, à ceux présentement revendiqués.

Quantité de faujasite utilisée dans le document (9)

5.3.7 Les adsorbants décrits dans le document (9) comprennent d'après ce document généralement de 75 à 98 % en poids de zéolite X (voir colonne 6, lignes 50 à 53), cette zéolite étant définie par référence au document (4) (voir point 5.3.1 *supra*), le reste de l'adsorbant étant généralement constitué par de l'alumine ou de la silice amorphe qui sert de liant (document (9), colonne 6, lignes 53 à 56 et colonne 1, lignes 52 à 56). Il découle de plus du point 5.3.3 ci-dessus que l'homme du métier cherchant à reproduire les zéolites X telles que

décrites dans le document (4) pour des rapports atomiques Si/Al se rapprochant de 1,00 n'obtient pas la zéolite X recherchée, mais un mélange de zéolite A et d'une zéolite X possédant un rapport atomique Si/Al supérieur. Il s'en suit que l'homme du métier, pensant mettre en œuvre l'enseignement du document (9) pour des zéolites X dont le rapport atomique Si/Al souhaité se rapproche de ceux définis dans la revendication présente, n'obtiendrait pas nécessairement, compte tenu de la quantité de liant indiquée dans le document (9) et de la quantité de zéolite A accidentellement obtenue, un adsorbant comprenant une quantité de zéolite X d'au moins 70%.

Conclusions concernant la nouveauté vis-à-vis du document (9)

5.3.8 Il ressort de l'analyse précédente que les faujasites divulguées dans le document (9) présentent des rapports atomiques Si/Al qui se chevauchent avec ceux définis dans la revendication 1 présente, sans que des valeurs particulières appartenant au domaine commun ne soient divulguées dans cette antériorité. Il ressort également de cette analyse que le taux d'échange au baryum utilisé dans le document (9) n'est pas limité aux valeurs définies dans la revendication 1 présente. Constatant d'une part, que les adsorbants particuliers divulgués dans le document (9) (adsorbants du tableau 4) n'indiquent pas de préférence pour un taux d'échange au baryum d'au moins 70%, et d'autre part, qu'une quantité de faujasite d'au moins 70% n'est pas nécessairement obtenue lorsque on applique l'enseignement du document (9), la Chambre conclut que la combinaison de caractéristiques selon la revendication 1 présente ne

peut être déduite directement et sans ambiguïté de l'antériorité (9).

5.3.9 L'objet de la revendication 1 est donc nouveau vis-à-vis du document (9).

5.4 Nouveauté au regard du document (8)

Utilisation d'un liant

5.4.1 Les adsorbants décrits dans le document (8) (colonne 3, lignes 12 à 24) incluent les zéolites de type X ou Y échangées à la fois au baryum et au potassium. Le passage à la colonne 3, lignes 63 à 66 décrit que ces zéolites peuvent contenir un liant afin de maintenir la cohésion des particules d'adsorbants et qu'une quantité de liant représentant jusqu'à 25% en poids de l'aluminosilicate cristallin n'est pas inhabituelle. Par conséquent, l'utilisation d'un liant est optionnelle et la terminologie "zéolite" telle qu'utilisée dans le document (8) ne couvre pas uniquement la zéolite pure, mais peut également couvrir un matériau comprenant la zéolite et le liant. L'utilisation d'un liant est divulguée dans l'exemple II (adsorbants VII à XV, voir note au bas du tableau II, colonne 8). Celui-ci peut être une argile (colonne 2, lignes 67 à 69).

Rapport atomique Si/Al des zéolites X

5.4.2 Selon le document (8) (colonne 3, lignes 25 à 26), une zéolite X possède une composition approximative donnée par la formule $(0.9 \pm 0.2)M_{2/n}O : Al_2O_3 : (2.5 \pm 0.5)SiO_2 : yH_2O$. Cette formule est identique à celle donnée dans les documents (4) et (9), une référence au document (4) se

trouvant également à la colonne 3, lignes 12 à 24 du document (8). Suivant d'une part pour le document (8) un raisonnement analogue à celui donné pour le document (9) (cf. points 5.3.2 et 5.3.3 *supra*) et considérant d'autre part, que le document (8) confirme que la formule des zéolites X indiquée n'était qu'approximative, il n'est pas possible d'affirmer qu'une zéolite de type X, possédant un rapport atomique Si/Al d'une valeur de 1.0, est divulguée par le document (8).

5.4.3 Le rapport atomique Si/Al des zéolites de type X pouvant être utilisées selon le document (8) n'est pas plus précisé. L'exemple III se contente seulement d'indiquer l'analyse chimique des adsorbants XVI à XIX, à partir desquels des rapports atomiques Si/Al compris entre 1,12 et 1,20 peuvent être calculés. Cependant, au vu d'une part de l'utilisation fréquente d'un liant, en particulier d'une argile (voir passage colonne 3, lignes 63 à 69 et l'exemple II), c'est à dire un matériau comprenant généralement du silicium et de l'aluminium, et d'autre part au vu du fait que la terminologie "zéolite" utilisée dans le document (8) couvre également des adsorbants comprenant un liant (cf. point 5.4.1 *supra*), il n'est pas possible d'affirmer que l'analyse chimique des adsorbants XVI à XIX correspond à celle de la zéolite X utilisée à proprement dit.

5.4.4 Il est donc conclu que le document (8) ne divulgue pas une zéolite X possédant un rapport atomique Si/Al tombant dans le domaine de valeurs défini par la revendication 1 présente.

Taux d'échange au baryum

5.4.5 Selon le document (8) (colonne 4, lignes 34 à 43), au moins 30% et jusqu'à 100% des sites échangeables de la zéolite sont occupés par des ions baryum et potassium, le rapport en poids entre le baryum et le potassium pouvant varier typiquement entre 1 et 100. Le document (8) considère donc des taux d'échange au baryum qui peuvent être inférieurs à ceux présentement revendiqués. Les adsorbants exemplifiés n'indiquent pas qu'une préférence soit donnée à des taux d'échanges compris dans le domaine défini par la revendication présente.

Conclusions concernant la nouveauté vis-à-vis du document (8)

5.4.6 Les faujasites décrites dans le document (8) possèdent des rapports atomiques Si/Al qui se recouvrent avec ceux définis dans la revendication 1 présente, des valeurs particulières appartenant à la zone de recouvrement n'étant pas divulguées. Il n'est de plus pas indiqué que les zéolites correspondant à cette zone de recouvrement doivent être obligatoirement d'une part utilisées avec un liant et d'autre part qu'au moins 70% de leurs sites échangeables soient occupés par des ions baryum. Il est donc conclu à la nouveauté de l'objet revendiqué vis-à-vis du document (8).

5.5 L'objet de la revendication 1 de la troisième requête subsidiaire satisfait donc aux conditions de l'article 54 CBE.

6. *Activité inventive*

L'état de la technique le plus proche

6.1 L'état de la technique le plus proche pris en considération pour apprécier l'activité inventive est normalement un état de la technique qui divulgue un objet conçu dans le même but ou visant à atteindre le même objectif que l'invention revendiquée et qui présente pour l'essentiel des caractéristiques techniques semblables, à savoir qui appelle peu de modifications structurelles (voir La Jurisprudence des Chambres de recours de l'Office européen des brevets, 4^{ème} édition, 2001, I.D.3.1).

La demande présente (page 1, lignes 1 à 8) concerne des adsorbants zéolitiques utilisés pour la récupération de paraxylène à partir de coupes d'isomères C₈ aromatiques. Les adsorbants comprennent un liant et au moins 70% de faujasite de rapport atomique Si/Al tel que $1 \leq \text{Si/Al} \leq 1,15$ dont les sites échangeables sont occupés au moins à 70% par des ions baryum et éventuellement jusqu'à 30% par du potassium.

Parmi les documents cités dans la procédure qui concernent des adsorbants zéolitiques utilisés pour la récupération de paraxylène à partir de coupes d'isomères C₈ aromatiques, seuls le document (8) (voir colonne 2, lignes 5 à 16 et l'exemple II) et le document (9) (voir colonne 1, lignes 7 à 14 et l'exemple II) concernent l'utilisation d'adsorbants agglomérés à base de zéolite X échangée au baryum. Le document (9) divulgue en particulier l'utilisation d'un adsorbant aggloméré désigné comme adsorbant C (exemple II, tableau 4,

colonnes 11 et 12) qui comprend une faujasite de rapport atomique Si/Al de 1,25 (tableaux 1 et 2, colonne 10) dont 86% des sites échangeables sont occupés par des ions baryum (voir point 5.3.6 *supra*). Le document (8), dont le contenu ne permet pas de déterminer le rapport atomique Si/Al des zéolites employées dans les exemples (voir point 5.4.3 *supra*), ne peut être considéré comme divulguant des adsorbants structurellement plus proches de ceux présentement revendiqués. Il est donc conclu que le document (9) représente l'état de la technique le plus proche.

Problème et solution

6.2 L'invention présente permet selon la demande telle que déposée (page 2, lignes 29 à 33) d'obtenir des adsorbants offrant des sélectivités paraxylène / métaxylène ou paraxylène / orthoxylène d'au moins 2,0 et avantageusement d'au moins 2,5 mesurées selon les tests décrits dans les exemples. Les passages page 5, lignes 7 à 14, page 7, lignes 7 à 10 et page 9, lignes 1 à 2, font état d'une meilleure sélectivité pour le paraxylène vis-à-vis de l'éthylbenzène, moyennant une consommation de désorbant raisonnable.

Les adsorbants décrits dans le document (9) (exemple II, tableau 4) possèdent des sélectivités pour le paraxylène vis-à-vis du métaxylène, de l'orthoxylène ou de l'éthylbenzène élevées. Les valeurs de sélectivité obtenues, qui dépendent des conditions de mesure employées, ne sont pas absolues. Elles ne peuvent en particulier être directement comparées avec celles obtenues dans la demande, car il n'existe pas de corrélation entre les tests dynamiques tels qu'utilisés

dans le document (9) et les tests statiques utilisés dans la demande. Une comparaison objective des résultats obtenus dans le document (9) avec ceux présentés dans la demande présente étant impossible, il convient d'examiner si les résultats présentés dans la demande permettent à eux seuls de déterminer la contribution apportée par les adsorbants revendiqués par rapport à l'état de la technique le plus proche.

L'adsorbant témoin désigné en tant qu'exemple 1 dans la demande est un aggloméré comprenant de la kaolinite et 85% de faujasite de rapport atomique Si/Al de 1,25, dont les sites échangeables sont occupés à 95% par des ions baryum (cf. point V. c) *supra*). Il est très proche, de par la nature de la zéolite utilisée, de l'adsorbant C employé dans l'exemple II du document (9), qui est l'adsorbant du document (9) présentant les meilleures sélectivités paraxylène / métaxylène et paraxylène / orthoxylène. Cet adsorbant C comprend une faujasite de rapport atomique Si/Al de 1,25 (voir tableaux 1 et 2, colonne 2) dont 94% des sites échangeables sont occupés par des ions baryum. L'adsorbant témoin désigné en tant qu'exemple 1 dans la demande est donc considéré être représentatif de l'état de la technique le plus proche constitué par le document (9).

- 6.3 Le tableau suivant présente pour l'adsorbant témoin 1 utilisé dans l'exemple 1 (représentatif de l'état de la technique le plus proche) et les adsorbants utilisés dans les exemples 2, 3, 5, 6, 8 et 9 de l'invention, d'une part certaines caractéristiques des adsorbants (rapport atomique Si/Al de la faujasite, taux de sites échangeables occupés par des ions baryum et perte au feu à 900°C) et d'autre part les résultats des tests de

sélectivité effectués avec un mélange comprenant du paraxylène, du métaxylène, de l'orthoxyène, de l'éthylbenzène et du toluène (volume de paraxylène adsorbé, sélectivités pour le paraxylène par rapport à l'orthoxyène (PX/OX), au métaxylène (PX/MX), à l'éthylbenzène (X/EB) et au toluène (PX/TOL)). La nature et la quantité de liant utilisées sont les mêmes pour tous les adsorbants. Le tableau indique si l'adsorbant est obtenu suite à une étape de zéolitisation du liant.

Adsorbant	1	2	3	5	6	8	9
Zéolitisation du liant	Non	Non	Oui	Oui	Oui	Oui	Non
Rapport atomique Si/Al	1,25	1,01	1,01	1,01	1,01	1,01	1,12
Sites échangés au Ba (%)	95	95	95	95	95	74	95
Perte au feu à 900°C (%)	4,5	5	5,2	6,6	4,4	6,4	5,2
Paraxylène adsorbé (cm ³ /g)	0,054	0,057	0,066	0,065	0,062	0,06	0,059
Sélectivité PX/OX	2,25	2,60	2,64	4,21	2,17	3,82	2,52
Sélectivité PX/MX	2,12	2,55	2,60	3,11	2,01	3,01	2,50
Sélectivité PX/EB	1,77	2,80	2,75	2,37	2,76	2,42	2,62
Sélectivité PX/TOL	1,52	2,00	1,94	1,55	1,90	1,72	1,78

6.3.1 Il est tout d'abord noté que la perte au feu à 900°C, qui dépend de la quantité d'eau adsorbée dans la zéolite, a une influence sur la sélectivité de l'adsorbant pour le paraxylène par rapport au métaxylène, à l'orthoxyène

et à l'éthylbenzène. Ceci est illustré par les exemples 3, 5 et 6. Il est donc essentiel si l'on souhaite déterminer de manière objective le problème résolu par les adsorbants selon la revendication 1 présente par rapport à ceux divulgués dans le document (9) de s'assurer que les adsorbants comparés présentent des pertes au feu voisines.

6.3.2 La zéolitisation du liant, tel que soutenu par les requérants, conduit à la formation d'une zéolite dont la nature est identique à celle présente à l'origine en mélange avec le liant. Le liant n'ayant pas de capacité d'adsorption, l'étape de zéolitisation, de part l'augmentation de la quantité de zéolite présente dans l'adsorbant, conduit à une augmentation de la quantité de paraxylène pouvant être adsorbée sans influencer la sélectivité de l'adsorbant. Ceci est par exemple illustré dans le cadre de l'invention par les exemples 2 et 3.

6.3.3 Compte tenu des remarques effectuées au points 6.3.1 et 6.3.2 *supra*, on peut déduire des exemples 1 et 6, qui outre l'étape de zéolitisation ne diffèrent l'un de l'autre que par leur rapport atomique Si/Al (1,25 contre 1,01), que la diminution du rapport atomique Si/Al conduit à une forte augmentation de la sélectivité de l'adsorbant pour le paraxylène par rapport à l'éthylbenzène (sélectivité PX/OX de 2,76 pour un rapport atomique Si/Al de 1,01 contre 1,77 pour un rapport atomique Si/Al de 1,25), les sélectivités pour le paraxylène par rapport au métaxylène et à l'orthoxyène restant à peu près les mêmes.

Une comparaison entre les adsorbants 2 et 9, qui à part des rapports atomiques Si/Al différents (1,01 pour l'adsorbant 2 et 1,12 pour l'adsorbant 9) possèdent des caractéristiques très proches, montre une tendance similaire, bien que moins marquée, la sélectivité de l'adsorbant pour le paraxylène par rapport à l'éthylbenzène passant de 2,62 pour un rapport Si/Al de 1,12 à 2,80 pour un rapport Si/Al de 1,01.

- 6.3.4 Par ailleurs, une comparaison des adsorbants 5 et 8 indique que le taux d'échange des ions baryum n'a dans le domaine revendiqué quasiment aucune influence sur la sélectivité de l'adsorbant pour le paraxylène par rapport à l'éthylbenzène, celle-ci variant entre 2,37 pour un taux d'échange de 95% et 2,42 pour un taux d'échange de 74%.
- 6.3.5 De plus, il est apparent au vu des adsorbants 1, 2 et 9 que l'augmentation de sélectivité pour le paraxylène vis-à-vis de l'éthylbenzène notée dans les points précédents ne s'opère pas au détriment de la quantité de paraxylène adsorbée et que la sélectivité de l'adsorbant pour le paraxylène vis-à-vis du toluène est favorable à une désorption du paraxylène moyennant une consommation raisonnable en désorbant.
- 6.4 Par conséquent, au vu des résultats expérimentaux exposés dans la demande et de leur analyse effectuée aux points précédents, la Chambre conclut que la contribution apportée par les adsorbants revendiqués par rapport à l'état de la technique le plus proche réside dans l'amélioration de la sélectivité pour le paraxylène vis-à-vis de l'éthylbenzène, c'est à dire une amélioration

de la séparation du paraxylène à partir de charges riches en éthylbenzène.

Caractère de la solution

6.5 Il reste à déterminer si l'homme du métier partant des adsorbants divulgués dans le document (9) et souhaitant améliorer leur sélectivité pour le paraxylène par rapport à l'éthylbenzène, serait arrivé de manière évidente à la combinaison des caractéristiques telle que définie dans la revendication 1 présente.

6.5.1 Les documents (9), (8), (7) et (1) divulguent un procédé de séparation du paraxylène utilisant des faujasites échangées au baryum, dont la formule empirique indique que des variations du rapport atomique Si/Al autour de la valeur 1,25 étaient envisagées. Ces documents cependant n'indiquent pas, explicitement ou implicitement, qu'une diminution quelconque d'un tel rapport pourrait être bénéfique à la sélectivité pour le paraxylène vis-à-vis de l'éthylbenzène. Une comparaison au sein de ces documents des tests de sélectivité effectués, lorsque ceux-ci sont effectués avec plus d'un adsorbant, c'est le cas uniquement des documents (9), (8) ou (1), ne permet pas non plus à l'homme du métier de trouver un enseignement en la matière. Ces tests utilisent des adsorbants dont la zéolite présente un rapport atomique Si/Al unique (documents (9) ou (1)) ou des adsorbants pour lesquels le rapport atomique Si/Al de la zéolite ne peut être connu avec certitude (document (8), voir point 5.4.3, supra). Les documents (9), (8) ou (1) ne peuvent donc contenir une incitation, même implicite, pour l'homme du métier souhaitant augmenter la sélectivité de l'adsorbant pour le

paraxylène vis-à-vis de l'éthylbenzène, de baisser le rapport atomique Si/Al dans les proportions définies dans la demande.

6.5.2 Le document (6) qui concerne un procédé de séparation et de récupération de paraxylène contenu dans une charge d'hydrocarbures aromatiques en C₈ pouvant utiliser des zéolites qui ne sont pas restreintes aux faujasites, ne contient aucune indication quant à l'importance du rapport atomique Si/Al pour cette séparation. Les autres documents cités dans la procédure n'ont pas trait à la séparation du paraxylène. Ils ne peuvent donc pas non plus guider l'homme du métier vers la solution proposée par la demande.

6.6 Il est donc conclu que l'homme du métier partant de l'enseignement du document (9) n'aurait pas été guidé par l'état de la technique à utiliser un adsorbant tel que revendiqué s'il souhaitait obtenir des adsorbants dont la sélectivité pour le paraxylène par rapport à l'éthylbenzène a été améliorée. Les adsorbants objets de la revendication 1 sont donc inventifs au sens de l'article 56 CBE. Le caractère inventif des revendications dépendantes 2 à 5, des revendications 6 et 7 portant sur un procédé d'obtention desdits adsorbants et des revendications 8 à 13 portant sur un procédé de récupération de paraxylène à partir de coupes d'isomères C₈ aromatiques les utilisant découle de celui de la revendication 1.

7. Les revendications 1 à 13 de la troisième requête subsidiaire remplissent donc les exigences de la CBE.

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

1. La décision attaquée est annulée.

2. L'affaire est renvoyée à l'instance du premier degré afin de délivrer un brevet sur la base des revendications 1 à 13 de la troisième requête subsidiaire fournie pendant la procédure orale devant la Chambre et d'une description à être adaptée si nécessaire.

La Greffière :

Le Président :

D. Meyfarth

S. Perryman