

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 27 avril 2006

N° du recours : T 0954/03 - 3.3.07

N° de la demande : 98401991.9

N° de la publication : 0897748

C.I.B. : B01J 33/00

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :

Protection de catalyseurs par dépôt de couche protectrice

Demanderesse :

EURECAT SA.

Opposant :

-

Référence :

-

Normes juridiques appliquées :

CBE Art. 54, 111(1), 123

Mot-clé :

"Modifications - extension de l'objet de la demande - (non) "

"Nouveauté - (oui) après modification"

"Renvoi de l'affaire - (oui) "

Décisions citées :

-

Exergue :

-



N° du recours : T 0954/03 - 3.3.07

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.07
du 27 avril 2006

Requérante : EURECAT SA.
(Demanderesse) : Quai Jean Jaurès
B.P. 45
F-07800 La Voulte-sur-Rhône (FR)

Mandataire : Benoist, François
Institut Français du Pétrole
1 et 4, avenue de Bois-Préau
F-92852 Rueil-Malmaison (FR)

Décision attaquée : Décision de la division d'examen de l'Office
européen des brevets postée le 27 mars 2003
par laquelle la demande de brevet européen
n° 98401991.9 a été rejetée conformément aux
dispositions de l'article 97(1) CBE.

Composition de la Chambre :

Président : B. ter Laan
Membres : G. Santavicca
J.-P. Seitz

Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet européen n° 98 401 991.9, déposée le 5 août 1998 et revendiquant la priorité d'une demande antérieure déposée en France le 11 août 1997 (FR 9710361), comportait 15 revendications. Le libellé de la revendication 1 s'énonçait comme suit :

"1. Procédé de passivation d'un catalyseur hétérogène de réactions de raffinage ou d'hydroconversion d'hydrocarbures caractérisé en ce qu'on enrobe la surface externe des particules du dit-catalyseur hétérogène d'au moins une couche protectrice d'un matériau d'enrobage."

II. Par une décision de la division d'examen, remise à la poste le 27 mars 2003, la demande telle que modifiée sur la base des revendications 1 à 9 déposées avec la lettre du 9 janvier 2003, en tant que seule requête, a été rejetée. La revendication 1 avait le libellé suivant :

"1. Procédé de passivation d'un catalyseur hétérogène de réactions de raffinage ou d'hydroconversion d'hydrocarbures comportant un support et une paire de métaux choisie dans le groupe constitué par CoMo, NiMo et NiW, caractérisé en ce que en enrobe la surface externe des particules ou des grains du dit catalyseur hétérogène d'au moins une couche protectrice d'au moins un matériau d'enrobage choisi dans le groupe constitué par les résines et les bases lubrifiantes utilisées seules sous forme liquide ou en solution dans un solvant, les polymères et copolymères, utilisées diluées dans un solvant, le dit matériau étant présent en quantité inférieure à la moitié du remplissage du volume poreux

du catalyseur, le dit matériau étant inerte et étant ultérieurement éliminé dans la zone réactionnelle où se déroulera la dite réaction de raffinage ou d'hydroconversion d'hydrocarbures, la dite couche étant obtenue par atomisation ou dispersion du matériau sur le catalyseur, en maintenant le catalyseur sous agitation, avec formation d'un anneau protecteur ou d'un gradient, par cristallisation, figeage ou épaissement au contact du catalyseur."

D'après la décision, le procédé de passivation d'un catalyseur décrit par le document D1 (EP-A-0 311 508) détruisait la nouveauté des objets des revendications indépendantes 1, 8 et 9. Les objets des revendications dépendantes 2 à 7 ne semblaient pas impliquer une activité inventive par rapport aux objets de D1. Par conséquent, la demande devait être rejetée.

III. Le 28 mai 2003, la demanderesse (ci-après, la requérante) a formé un recours contre cette décision en acquittant la taxe prescrite le même jour.

Avec son mémoire exposant les motifs du recours, reçu le 28 juillet 2003, la requérante a déposé un nouveau jeu de revendications modifiées 1 à 7 en tant que requête principale, trois jeux de revendications modifiées à titre de requêtes auxiliaires n° 1 à n° 3, ainsi qu'un exemple supplémentaire, à titre comparatif.

Puis, en réponse à la communication de la Chambre datée du 16 décembre 2005, indiquant les points à discuter lors de la procédure orale et mentionnant le document D2 (WO-A-94/25157), la requérante a déposé de nouveaux jeux de revendications modifiées, à titre principal et à

titre subsidiaire, les exemples 4 bis et 4 ter ainsi que des documents portant sur les huiles de base Total et sur les paraffines et les cires microcristallines (produits Aiglon) (lettre datée du 27 mars 2006).

Enfin, par lettre datée du 26 avril 2006, la requérante a soumis les exemples 4 quater et 4 quinquies.

La procédure orale a eu lieu le 27 avril 2006. Le document D3 (US-A-3 453 217), cité et commenté dans la demande en cause, a été versé aux débats. Après une discussion des exigences de clarté et de suffisance de l'exposé, la requérante a soumis un nouveau jeu de deux revendications modifiées en tant que seule requête. Le libellé des dites revendications 1 et 2 s'énonce comme suit :

"1. Procédé de passivation d'un catalyseur hétérogène de réactions de raffinage ou d'hydroconversion d'hydrocarbure contenant les associations métalliques CoMo, NiMo, NiW sur support alumine et/ou silice-alumine qui contiennent une phase active de type sulfure métallique dans lequel on enrobe la surface externe des particules dudit catalyseur hétérogène d'au moins une couche protectrice d'un matériau d'enrobage, qui est une base lubrifiante choisie dans le groupe des composés hydrocarbonés d'origine pétrolière qui est déposée, en maintenant le catalyseur sous agitation, en une quantité égale à moins de 30% poids par rapport au solide (catalyseur), qui est atomisée à chaud afin de réduire sa viscosité sur un solide froid
ou

qui est diluée dans un solvant et est appliquée par atomisation, à une température supérieure au point d'ébullition du solvant qui est rapidement éliminé par vaporisation au contact du catalyseur, procédé dans lequel le matériau est inerte et est éliminable dans la zone réactionnelle aux conditions de la réaction de raffinage ou d'hydroconversion."

"2. Procédé selon la revendication 1 dans lequel la quantité d'agent est égale à moins de 25% poids par rapport au solide (catalyseur)."

IV. Les arguments de la requérante peuvent se résumer ainsi :

- a) Les revendications 1 et 2 se fondaient sur les revendications telles que déposées et sur des passages utilisant les mêmes termes dans la demande d'origine. En particulier, la définition de l'agent d'enrobage comportait les termes utilisés dans les revendications 4 et 5 d'origine.
- b) Quant à la suffisance de l'exposé, la dénomination des huiles de base correspondait à une classification utilisée au plan international. Les huiles de base étaient des produits connus, en particulier celles du type "Neutral" étaient commercialisées par la société Total. L'objet de la demande en cause pouvait donc être reproduit sans problèmes par l'homme de l'art.
- c) Quant à la nouveauté, l'objet de la demande en cause, tel que défini dans la présente revendication 1, consistait à atomiser une huile de base d'origine pétrolière, en une quantité réduite, sur des grains d'un catalyseur de raffinage ou d'hydroconversion,

maintenu sous agitation, en vue de les enrober d'une couche protectrice. Les huiles de base étaient liquides à 20°C.

D1 ne portait pas sur un catalyseur de raffinage ou d'hydroconversion contenant les associations métalliques Co Mo, Ni Mo, Ni W tel que défini dans la revendication 1, mais sur des catalyseurs comprenant des acides de Lewis. En plus, pour réaliser un film d'enrobage sur les grains de catalyseur, le procédé de D1 utilisait des hydrocarbures saturés solides à 20°C tels que les cires microcristallines ou les paraffines microcristallines, lesquelles étaient fondues puis déposées par projection sur les grains de catalyseur. Cependant, les cires microcristallines n'étaient pas des huiles de base et une projection ne correspondait pas à une atomisation. Donc, le procédé faisant l'objet de la présente revendication 1 était nouveau par rapport à celui divulgué par D1.

D2 portait sur un catalyseur de raffinage ou d'hydroconversion tel que revendiqué mais son procédé utilisait, comme agent d'enrobage, des composés hydrocarbonés oxygénés ayant au moins 12 atomes de carbone, lesquels composés étaient imprégnés à cœur ou à plus de 50% du volume poreux total. Les huiles de base étaient des hydrocarbures ne contenant pas d'oxygène. Aussi, l'agent d'enrobage était imprégné. En tout cas, D2 ne divulguait pas un enrobage utilisant moins de 30% en poids d'agent d'enrobage. Donc, le procédé tel que revendiqué était nouveau aussi par rapport à celui de D2.

Par conséquent, les objections soulevées dans la décision attaquée se trouvaient surmontées.

- d) Quant à la l'activité inventive, elle ne faisait pas l'objet de la décision attaquée, quoique la demanderesse ait soumis des arguments sur ce point. En outre, l'état de la technique le plus proche n'était pas décrit par D1 mais par D2 et, aussi, au vu des restrictions apportées aux revendications, par le document évoqué par la Chambre, à savoir D3 = US-A-3 453 217, qui était cité et commenté dans la demande en cause mais qui n'avait jamais été discuté devant l'instance du premier degré.

- V. La requérante a requis l'annulation de la décision attaquée et le renvoi de l'affaire à la première instance afin de poursuivre la procédure sur la base des revendications 1 et 2 telles que déposées pendant la procédure orale.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.
2. *Modifications*
 - 2.1 Par rapport à la revendication 1 d'origine (Point I, *supra*), la revendication 1 de la seule requête en cause comporte les modifications suivantes, qui se fondent sur les passages suivants de la demande d'origine :
 - a) "contenant les associations métalliques Co Mo, Ni Mo, Ni W sur un support alumine et/ou silice-alumine qui

contiennent une phase active de type sulfure métallique" (page 1, lignes 4 à 6) ;

- b) "qui est une base lubrifiante choisie dans le groupe des composés hydrocarbonés d'origine pétrolière" (revendications 4 et 5) ;
- c) "qui est déposée en une quantité égale à moins de 30% poids par rapport au solide (catalyseur)" (page 3, lignes 23 à 25) ;
- d) "en maintenant le catalyseur sous agitation" (étapes (a) des revendications 10 et 11) ;
- e) "qui est atomisée à chaud afin de réduire sa viscosité sur un solide froid" (page 4, lignes 19 à 20) ;
- f) "qui est diluée dans un solvant et est appliquée par atomisation à une température supérieure au point d'ébullition du solvant qui est rapidement éliminé par vaporisation au contact du catalyseur" (étape (a) de la revendication 11 et page 4, lignes 24 à 29) ;
- g) "procédé dans lequel le matériau est inerte et est éliminable dans la zone réactionnelle aux conditions de la réaction de raffinage ou d'hydroconversion" (revendication 2).

2.2 La revendication 2 se fonde sur le mode préféré mentionné tel quel dans le passage de la page 3, ligne 25, de la description d'origine.

2.3 Par conséquent, la demande n'a pas été modifiée de manière que son objet s'étende au-delà du contenu de la demande telle que déposée à l'origine (article 123(2) CBE).

2.4 Les termes utilisés dans les nouvelles revendications se retrouvent tels quels dans les pièces d'origine, en particulier dans les revendications d'origine. Ces termes n'ont pas appelé une objection d'absence de clarté au titre de l'article 84 CBE dans les notifications de la division d'examen. La Chambre n'a aucune raison de prendre une position différente.

2.5 Il s'ensuit de ce qui précède que la seule requête en cause est recevable.

3. *Suffisance de l'exposé*

Bien que la Chambre ait soulevé la question de savoir si l'objet revendiqué pouvait être reproduit par un homme de l'art sans effort excessif (communication de la Chambre, en préparation de la procédure orale, datée du 16 décembre 2005, points 5.3), considérant les documents remis par la requérante avec sa lettre datée du 27 mars 2006, documents qui portent sur des huiles de base d'origine pétrolière, la Chambre n'a plus eu aucune raison de mettre en doute la suffisance de l'exposé de l'invention.

4. *Nouveauté*

4.1 D1 divulgue un catalyseur solide en grains et un procédé de préparation d'un tel catalyseur, caractérisé en ce que chacun de ses grains est enrobé d'un film protecteur,

continu et amovible, en une matière imperméable aux gaz et à l'humidité et inerte vis-à-vis des composants du catalyseur (revendications 1 et 10).

Le catalyseur selon D1 comprend un support choisi dans le groupe constitué par l'alumine, la silice, les aluminosilicates, les zéolites, la magnésie, la zircone, les oxydes de gallium, de titane, de thorium et de bore ou un mélange de ces oxydes, et au moins un composé actif choisi dans le groupe constitué par les acides de Lewis, notamment AlCl_3 et BF_3 , des métaux hydrolysables et des sulfures pyrophoriques (revendication 9).

Ladite matière d'enrobage a une température de fusion déterminée par la norme AFNOR NFT 60114 inférieure ou égale à 120°C (revendication 3). En particulier, la matière constituant le film protecteur est composée d'au moins un hydrocarbure saturé solide à 20°C tel que les cires microcristallines ou les paraffines rendues microcristallines par dopage au moyen d'un additif (revendication 4). La matière constituant le film protecteur représente entre 0,1 et 10 % du poids total des grains de catalyseur enrobés et, de préférence, entre 0,5 et 5 % en poids (revendication 8).

De manière préférable, l'enrobage de chacun des grains est obtenu par fusion et/ou solidification de la matière constituant le film protecteur à la surface de ces grains (revendication 11). En particulier, la fusion et/ou la solidification rapide de la matière constituant le film sont obtenues pour un écart de température entre les dits grains et la matière ou entre les zones chaudes et froides de l'enceinte de traitement, compris entre

1°C et 100°C et, de préférence, entre 20°C et 80°C (revendication 12).

Après chargement à l'atmosphère ambiante du catalyseur dans un réacteur où doit se dérouler ladite réaction, on rend l'atmosphère du réacteur inerte vis-à-vis du catalyseur non enrobé, et l'on élimine le film protecteur des grains de catalyseur par fusion et écoulement de la matière dudit film, préalablement à la mise en œuvre de ladite réaction ou au début de celle-ci (revendication 17).

Lesdits catalyseurs sont appliqués à des réactions chimiques se développant en atmosphères contrôlées, notamment à l'isomérisation des normal-paraffines de C₄ à C₈, et à l'alkylation des hydrocarbures oléfiniques et aromatiques (revendication 16).

4.1.1 Il suit de ce qui précède que D1 est axé sur l'enrobage des catalyseurs sensibles aux atmosphères humides et/ou oxygénées qui sont appliqués à des réactions chimiques se développant sous atmosphère contrôlée, telles que des réactions d'isomérisation et d'alkylation (colonne 1, lignes 4 à 12). Ces catalyseurs comprennent un support composé de substances réfractaires de surface spécifique et de volume poreux suffisant, comprenant des sites acides de Lewis ou des métaux ou des sulfures très actifs (colonne 1, lignes 15 à 20).

Parmi les catalyseurs à site acides de Lewis, D1 mentionne les catalyseurs de type Friedel-Craft à base d'AlCl₃, d'AlBr₃ et de BF₃. L'exemple de D1 porte sur un catalyseur adapté à l'isomérisation des n-paraffines de C₄ à C₇, comportant un support d'alumine et les éléments

Pt, Zr et Cl (sous forme d' AlCl_3) (colonnes 5 et 6), lequel est enrobé par 7% d'une cire de polyéthylène.

D1 mentionne aussi que d'autres catalyseurs au Nickel-Raney ou à base de sulfures pyrophoriques sont également sensibles aux atmosphères humides et oxygénées (colonne 1, lignes 38 à 40). Néanmoins, aucune mention ou exemplification plus spécifique des dits catalyseurs n'est donnée par D1.

4.1.2 Par conséquent, D1 ne divulgue pas de manière directe et non ambiguë un catalyseur hétérogène de réactions de raffinage ou d'hydroconversion d'hydrocarbure contenant les associations métalliques Co Mo, Ni Mo ou Ni W sur un support alumine et/ou silice-alumine qui contiennent une phase active de type sulfure métallique. D1 ne divulgue pas non plus que leur surface externe est enrobée par une base lubrifiante choisie dans le groupe des composés hydrocarbonés d'origine pétrolière.

4.1.3 Il s'ensuit que D1 ne saurait porter atteinte à la nouveauté du procédé faisant l'objet de la revendication 1 en cause.

4.2 D2 n'a pas fait l'objet de la décision attaquée, mais il a été mentionné dans la communication de la Chambre en préparation de la procédure orale.

4.2.1 D2 divulgue une composition comprenant un catalyseur spontanément combustible, ce catalyseur ayant été, au moins en partie, revêtu et/ou imprégné d'au moins un hydrocarbure oxygéné ayant au moins 12 atomes de carbone, afin d'affaiblir les caractéristiques d'auto-chauffage de ce catalyseur (revendication 1). De manière

préférable, l'hydrocarbure oxygéné est un acide, un ester d'acide, un alcool, une cétone, un aldéhyde ou un éther, ayant au moins 12 atomes de carbone (revendication 2). De manière plus préférable, l'ester d'acide est un ester d'acide gras et de glycérol, comportant de 16 à 100 atomes de carbone (revendication 3). De manière encore plus préférable, l'ester d'acide est un ester d'acide gras et de glycérol qui peut être insaturé (revendication 5) ou saturé (revendication 8).

- 4.2.2 Dans la composition catalytique faisant l'objet des revendications de D2, le catalyseur contient au moins un métal du groupe VIB ou du Groupe VIII du Tableau Périodique, ou un sulfure ou un oxyde d'un tel métal (revendication 10), ledit catalyseur étant supporté par de l'alumine, de la silice, de la silice-alumine, une zéolithe ou un mélange des ces supports (revendication 11).
- 4.2.3 Préféablement, le catalyseur est un catalyseur pré-soufré ou sulfuré (revendication 12), ou un catalyseur réduit (revendication 13), ou, encore, un catalyseur d'hydrocraquage (revendication 14), ou enfin un catalyseur d'hydrotraitement (revendication 15).
- 4.2.4 D2 divulgue aussi un procédé permettant d'affaiblir les caractéristiques d'auto-chauffage d'un catalyseur spontanément combustible, dans lequel procédé ledit catalyseur spontanément combustible est mis en contact avec au moins un hydrocarbure oxygéné qui comporte au moins 12 atomes de carbone (revendication 16). D'après D2, la mise en contact correspond à une imprégnation du catalyseur ou à une réaction avec le catalyseur (page 11,

lignes 15 à 21, et page 16, lignes 13 à 19), ou, aussi, par atomisation/pulvérisation ("spraying") de l'hydrocarbure oxygéné sur le catalyseur (page 16, lignes 20 à 23). La quantité minimale d'hydrocarbure oxygéné est telle qu'au moins 50% du volume poreux du catalyseur est rempli (page 15, lignes 16 à 28).

4.2.5 Il suit de ce qui précède que D2 porte sur les mêmes catalyseurs, pour les mêmes réactions, que ceux faisant l'objet de la demande en cause. Néanmoins, D2 porte sur une autre solution au même problème d'affaiblir l'auto-échauffement des grains de catalyseurs. Cette autre solution se distingue de celle proposée dans la demande en cause, et définie par les caractéristiques de la revendication 1 en examen, au moins par :

- a) L'emploi d'un autre matériau d'enrobage, c'est-à-dire un hydrocarbure oxygéné ayant au moins 12 atomes de carbone, qui est différent de la base lubrifiante choisie dans le groupe des composés hydrocarbonés d'origine pétrolière telle que définie dans la revendication 1 en cause. En fait, dans le Tableau 2 de la page 24 de D2, un carburant diesel, c'est-à-dire une substance hydrocarbonée d'origine pétrolière, est utilisé comme référence de comparaison ;
- b) L'emploi de quantités plus importantes dudit matériau d'enrobage, lesquelles doivent assurer qu'au moins 50% du volume poreux soit imprégné par l'hydrocarbure oxygéné. D'après la demande en cause, une quantité d'agent protecteur équivalente à moins de 30% par rapport au solide, telle que définie dans la revendication 1 en cause, ne saurait permettre

d'arriver au remplissage de la moitié du volume poreux du catalyseur (page 3, paragraphe 0009).

4.2.6 Par conséquent, le procédé divulgué par le document D2 ne saurait lui non plus porter atteinte à la nouveauté du procédé faisant l'objet de la revendication 1 en cause.

4.3 Concernant la question de savoir si le procédé tel que revendiqué est nouveau par rapport au procédé décrit par D3, la Chambre, considérant que ce document n'a été invoqué que concomitamment au dépôt de la seule requête au cours de la procédure orale devant la Chambre, ne peut laisser le soin d'un tel examen qu'à la division d'examen.

5. *Renvoi de l'affaire*

5.1 La décision attaquée mentionne simplement que les revendications dépendantes 2 à 7 ne semblent pas contenir de caractéristiques supplémentaires qui, en combinaison avec l'objet de l'une quelconque des revendications dont elles dépendent, impliqueraient une activité inventive et qu'il n'a pas été démontré dans la demande que l'une quelconque des caractéristiques de ces revendications pourrait être à l'origine d'un effet technique surprenant ou solution d'un problème technique différent de celui mentionné par D1. Donc, il est clair que seulement le document D1 a été considéré par la division d'examen et, également, qu'une analyse selon l'approche problème-solution n'a pas été donnée.

5.2 Par ailleurs, le document D2 est considéré par la demanderesse comme l'état de la technique le plus proche.

Aussi, le document D3, qui est cité et commenté dans la demande en cause, peut être considéré comme un document plus pertinent que D1. Les documents D2 et D3 n'ont pas fait l'objet d'un examen quant au fond par la division d'examen, ni, en conséquence, fait l'objet de la décision attaquée.

- 5.3 Le procédé de passivation d'un catalyseur hétérogène de réactions de raffinage ou d'hydroconversion d'hydrocarbure tel que défini dans la présente revendication 1 représente une activité beaucoup plus restreinte que celle faisant l'objet de la revendication 1 de la décision attaquée (Point II, *supra*).
- 5.4 Aussi, la restriction à l'emploi d'une seule classe d'agent d'enrobage (huile base) telle que définie dans la présente revendication 1 ne figurait pas telle quelle dans les revendications telles que déposées. Donc, la présente situation n'était pas reflétée dans les revendications initiales. Par conséquent, il n'est pas clair que le procédé actuellement revendiqué ait fait l'objet d'une recherche d'antériorité. D'autre part, il n'est pas clair, au vu des modifications apportées, qu'une recherche supplémentaire soit nécessaire.
- 5.5 Il suit de ce qui précède que l'objet de la seule requête en cause représente une toute nouvelle situation qui n'a pas fait l'objet d'un examen par l'instance du premier degré.
- 5.6 Par conséquent, les modifications apportées et les documents versés dans les débats appellent un réexamen qui doit être conduit de manière à garantir au demandeur

le droit de recourir à une deuxième instance, en particulier en ce qui concerne l'examen quant au fond de la présence d'une activité inventive (Jurisprudence des Chambres de recours de l'OEB, 4ème édition, 2001, VII.D.14.4).

- 5.7 Pour ces raisons, conformément à l'article 111(1) CBE, la Chambre décide de ne pas exercer les compétences de l'instance qui a pris la décision attaquée et de renvoyer l'affaire à la première instance afin de poursuivre la procédure.

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 poursuivre la procédure sur le fondement des revendications 1 et 2 déposées pendant la procédure orale.

La Greffière :

La Présidente :

C. Eickhoff

B. ter Laan