

**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 4 juillet 2007**

**N° du recours :** T 1362/04 - 3.3.06

**N° de la demande :** 99939170.9

**N° de la publication :** 1062022

**C.I.B. :** B01D 53/04

**Langue de la procédure :** FR

**Titre de l'invention :**

Décarbonatation de flux gazeux au moyen d'adsorbants  
zéolitiques

**Titulaire du brevet :**

CECA S.A.

**Opposant :**

L'AIR LIQUIDE, S.A. A DIRECTOIRE ET CONSEIL DE SURVEILLANCE  
POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE

**Référence :**

Zéolite/CECA

**Normes juridiques appliquées :**

CBE Art. 54, 56,  
CBE R. 67

**Mot-clé :**

"Nouveauté (oui)"  
"Activité inventive (oui)"  
"Remboursement de la taxe de recours (non)"

**Décisions citées :**

T 0511/92

**Exergue :**

-



N° du recours : T 1362/04 - 3.3.06

**D E C I S I O N**  
de la Chambre de recours technique 3.3.06  
du 4 juillet 2007

**Requérant :**  
(Opposant)  
L'AIR LIQUIDE, S.A. A DIRECTOIRE ET CONSEIL  
DE SURVEILLANCE POUR L'ETUDE ET  
L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE  
75 Quai d'Orsay  
F-75321 Paris Cedex 07 (FR)

**Mandataire :**  
Pittis, Olivier  
L'Air Liquide, S.A.  
Direction de la Propriété Intellectuelle,  
75, Quai d'Orsay  
F-75321 Paris Cedex 07 (FR)

**Intimé :**  
(Titulaire du brevet)  
CECA S.A.  
4/8, Cours Michelet  
F-92800 Puteaux (Hauts de Seine) (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'opposition de  
l'office européen des brevets postée le  
12 Novembre 2004 par laquelle l'opposition  
formée à l'égard du brevet européen  
No. 1062022 a été rejetée conformément aux  
dispositions de l'article 102(2) CBE.

**Composition de la Chambre :**

**Président :** P.-P. Bracke  
**Membres :** G. Raths  
J. Van Moer

## Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet européen n° 99 939170.9 a donné lieu à la délivrance du brevet européen n° 1 062 022 sur la base de 9 revendications. Les revendications 1 et 8 s'énoncent comme suit:

"1. Procédé de décarbonatation de flux gazeux, de préférence d'air, pollué par CO<sub>2</sub>, caractérisé en ce qu'on met en contact dans une zone d'adsorption le flux gazeux à purifier avec au moins un adsorbant essentiellement constitué d'une zéolite de type NaLSX de rapport Si/Al 1 à 1,15, échangée au sodium à un taux égal ou supérieur à 98%, le taux d'échange étant exprimé comme le rapport entre le nombre d'ions sodium et le nombre d'atomes d'aluminium en position tétraédrique, le reste de la capacité d'échange étant occupé par des ions potassium, agglomérée avec un liant, le taux de liant résiduel inerte de l'adsorbant étant inférieur ou égal à 20% en poids."

La revendication 8 diffère de la revendication 1 en ce que le passage

"8.Procédé de décarbonatation de flux gazeux, de préférence d'air, pollué par CO<sub>2</sub>, caractérisé en ce qu'on met en contact dans une zone d'adsorption le flux gazeux à purifier avec au moins"

est remplacé par le passage

"8. Procédé de purification d'air pollué par CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O caractérisé en ce qu'on met en contact dans une zone d'adsorption le flux gazeux à purifier avec au

moins un agent dessicant, de préférence à base d'alumine, et au moins avec ".

Les revendications dépendantes 2 à 7 et 9, respectivement, décrivent des représentations particulières de l'objet défini dans les revendications 1 ou 8.

II. Une opposition a été formée à l'encontre du brevet européen précité sur le fondement de l'article 100(a) CBE au motif que son objet n'était pas nouveau au sens de l'article 54(1)(2) CBE et n'impliquait pas d'activité inventive au sens de l'article 56 CBE.

Durant la procédure d'opposition, entre autres les documents suivants ont été soumis:

- (1) EP-A-0 718 024;
- (2) Gas Separation by Adsorption Processes, Ralph T. Yang, Butterworths, 1987, pages 22 and 23;
- (3) US-A-3 356 450;
- (4) EP-A-0 294 588;
- (5) US-A-4 481 018;
- (6) US-A-2 882 244;
- (7) GB-A-1 580 928 et
- (8) US-A-3 078 639.

III. Dans sa décision la Division d'opposition a estimé que les motifs d'opposition invoqués ne s'opposaient pas au maintien du brevet sous sa forme telle que délivrée.

IV. L'opposant (ci-après le requérant) a formé un recours à l'encontre de cette décision.

V. Les arguments du requérant peuvent être résumés comme suit:

L'objet de la revendication 1 n'est pas nouveau au vu du document (1) qui précise que la zéolite LSX utilisé pour adsorber le CO<sub>2</sub> dans le procédé qui y est enseigné peut avoir substantiellement tous ses cations échangés par des cations sodium (page 2, ligne 45 et page 3, ligne 24). L'exemple 1 du document (1) porte sur une zéolite NaLSX, à savoir la forme sodium de la zéolite X de rapport Si/Al égal à 1.02.

Selon l'exemple 1 du document (1), l'adsorbant est utilisé sous forme de lits insérés dans des récipients d'adsorption au travers desquels circulent les gaz à purifier (page 4, lignes 4 à 5), de façon qu'il est obligatoire que l'adsorbant soit sous forme de particules agglomérées (billes, extrudés ou autres) contenant la phase zéolitique adsorbante et un liant inerte.

Le document (1) divulgue donc les deux caractéristiques essentielles de l'objet de la revendication 1 à savoir le taux d'échange en sodium supérieur ou égal à 98% et la teneur en liant inférieure à 20%.

Partant du document (1) comme l'état de la technique le plus proche, le problème technique à résoudre consistait à améliorer le procédé du document (1) afin de pouvoir séparer plus efficacement le CO<sub>2</sub> d'un flux d'air (voir paragraphe 11).

L'homme du métier était dissuadé d'utiliser des catalyseurs LiRELSX et LiCaLSX cités dans le tableau du document (1) parce qu'ils coûtaient plus chers que ceux au sodium et qu'ils étaient moins performants que ceux ayant la forme NaLSX. Il n'y a donc pas eu d'effet surprenant.

- VI. L'intimé a réfuté les arguments du requérant.
- VII. Une procédure orale a eu lieu le 4 Juillet 2007 en l'absence du requérant dont il avait informé la Chambre dans sa lettre en date du 3 mai 2007.
- VIII. Le requérant a demandé par écrit l'annulation de la décision contestée, la révocation du brevet et le remboursement de la taxe de recours.

L'intimé demande le rejet du recours.

## **Motifs de la décision**

1. *Nouveauté*
  - 1.1 Toute divulgation de l'état de la technique détruit la nouveauté de l'objet revendiqué lorsque celui-ci dérive directement et sans aucune équivoque de cette divulgation, y compris les caractéristiques implicites pour l'homme du métier d'après ce qui est expressément divulgué (T 511/92, point 2.2 des motifs).
  - 1.2 Le procédé de décarbonatation de flux gazeux selon la revendication 1 du brevet contesté comporte

a) une zéolite de type NaLSX ayant un rapport Si/Al de 1 à 1,15, échangée au sodium à un taux égal ou supérieur à 98%, et

b) un liant, le taux de liant résiduel inerte de l'adsorbant étant inférieur ou égal à 20% en poids.

1.3 Selon le requérant le document (1) divulgue a) le taux d'échange en sodium supérieur ou égal à 98% et b) le liant.

1.4 Il n'a pas été disputé que le liant n'a pas été explicitement cité dans le document (1). Le requérant a fait valoir que les lits insérés dans des récipients d'adsorption selon le document (1) présupposent des conclusions de procédé telles que l'adsorbant contenant la zéolite soit sous forme de particules agglomérées obtenues avec un liant.

Or, la Chambre attire l'attention sur le document (2) qui divulgue la fabrication de fragments ou granulés dits "pellets" zéolitiques commerciaux (page 22, ligne 14 d'en bas): les cristaux, après avoir été calcinés ont été agglomérés et mis sous forme de "pellets" avec ou sans liant (page 23, lignes 12 à 13).

La Chambre conclut qu'il y a deux possibilités de fabrication. Si le document (1) n'en divulgue aucune, l'homme du métier n'en apprend rien. Il s'ensuit que la divulgation du liant ne dérive pas directement et sans aucune équivoque du document (1).

Pour ce qui est du taux d'échange en sodium supérieur ou égal à 98%, le requérant a présenté les arguments suivants:

Le document (1) précise que la zéolite LSX peut avoir substantiellement tous ses cations échangés par des cations sodium (page 2, ligne 45 et page 3, ligne 24). L'exemple 1 porte sur une zéolite NaLSX de rapport Si/Al de 1.02. Le document (1) précise que la zéolite est sous sa forme sodium (page 4, lignes 53 à 54).

Le requérant en conclut que "substantiellement tous ses cations" signifie "tous ou presque tous" ce qui serait équivalent à "100% ou presque 100%". En outre, "la zéolite sous sa forme sodium" signifierait "une zéolite ayant 100% de cations sous forme sodium".

La Chambre n'accepte pas la conclusion du requérant parce que l'interprétation est spéculative. L'expression "substantiellement tous" ou "essentiellement tous" ne comporte pas de valeur quantitative précise. En ce qui concerne l'expression "une zéolite sous sa forme sodium", cette expression ne comporte pas non plus de valeur quantitative. Par conséquent, le document (1) ne divulgue pas de taux d'échange supérieur ou égal à 98%.

L'objet de la revendication 1 est nouveau et satisfait aux conditions énoncées à l'article 54(1) et (2) CBE.

## 2. *Activité inventive*

- 2.1 L'invention concerne la décarbonatation de flux gazeux au moyen d'adsorbants zéolitiques. Elle a trait à la purification de flux gazeux pollués par du dioxyde de carbone, en particulier, à la purification de l'air avant les étapes de séparation N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> (page 2, lignes 5 à 6).



Le procédé de l'invention consiste à mettre ledit flux gazeux en contact avec un adsorbant zéolitique de type NaLSX (page 3, lignes 5 à 6).

L'état de la technique tel que décrit dans le brevet contesté peut être résumé comme suit:

A des températures voisines de l'ambiante, l'efficacité d'une zéolite classique X dont le rapport Si/Al est proche de 1,25, diminue fortement du fait de la compétition avec l'azote (page 2, lignes 41 à 47).

L'avantage d'une zéolite X dont le rapport Si/Al est inférieur à 1,15 par rapport à une zéolite classique X réside dans le fait qu'il n'est plus nécessaire de diminuer la température à l'étape de décarbonatation au moyen d'un système de réfrigération. Le gain d'efficacité d'une zéolite NaLSX, dont la capacité d'adsorption s'accroît avec le taux d'échange en sodium, commence à plafonner à des taux d'échange de l'ordre de 90%. Apparemment il n'y a plus d'intérêt à pousser l'échange au-delà de 95% (page 2, lignes 48 à 55).

- 2.2 Selon le brevet contesté le problème technique à résoudre consiste à améliorer l'efficacité pour la décarbonatation sous des pressions faibles de CO<sub>2</sub> c.-à-d. de l'ordre de 2 mbar. (page 2, ligne 56 à page 3, ligne 1).
- 2.3 Un procédé de décarbonatation est divulgué dans le document (1) qui a été pris comme point de départ pour évaluer l'activité inventive par les deux parties, et la Chambre se rallie à cette démarche.

- 2.4 Le tableau selon le document (1) compare la performance d'une zéolite NaX, avec une zéolite NaLSX, Li,RELSX (RE représentant un métal d'une terre rare), Li,CaLSX. Il s'avère qu'à une température de 35°C, la performance de Li,CaLSX et de Li,RELSX l'emporte sur celle de NaLSX pour les pressions partielles de CO<sub>2</sub> variant entre 2 et 100 mbar alors qu'à une pression de 300 mbar, NaLSX l'emporte sur les deux adsorbants précités. Pour ce qui est des températures à 5°C et 50°C, des résultats comparatifs ne sont pas disponibles.
- 2.5 Le requérant a défini le problème sous-jacent du brevet contesté à la lumière du document (1) comme une amélioration du procédé selon le document (1) afin de pouvoir séparer plus efficacement le gaz carbonique d'un flux d'air (lettre en date du 28 janvier 2005, page 7, B.3).
- 2.6 En l'absence d'une indication du taux d'échange de sodium dans le document (1), il n'est pas possible d'évaluer le gain de performance obtenu par le procédé revendiqué par rapport à celui promulgué dans le document (1). Voilà pourquoi, à la lumière de l'enseignement du document (1), le problème technique que le brevet contesté se propose de résoudre ne peut qu'être que la mise à disposition d'un autre procédé pour atteindre une décarbonatation satisfaisante, ce qui ne fut pas contesté par l'intimé pendant la procédure orale.
- 2.7 Selon le tableau 1 du brevet contesté les performances en capacité d'adsorption de CO<sub>2</sub> à 25°C et à des pressions partielles de CO<sub>2</sub> de 2 mbar, 5 mbar et 10 mbar, obtenues

avec des granulés de zéolite NaLSX agglomérée avec 15% de liant et dont le taux d'échange en sodium est de 99,5% sont supérieures à celles obtenues avec une zéolite dont le taux d'échange est de 94,5% et 97,5%. Pour un taux d'échange de 97,5%, l'accroissement de gain d'adsorption est de 16,8%, 8,33% et 5,05% par rapport à une zéolite ayant un taux d'échange en sodium de 94,5%. Pour un taux d'échange de 99,5%, l'accroissement de gain est de 28,8%, 12,9% et 7,7%, par rapport à une zéolite ayant un taux d'échange de 94,5% pour les trois pressions partielles précitées.

2.8 En vue des exemples du brevet contesté, la Chambre est convaincue que le problème tel que défini sous le point 2.6 est effectivement résolu par le procédé revendiqué qui consiste à utiliser une zéolite LSX dont le taux d'échange en sodium est au moins 98%, ce taux d'échange étant défini comme le rapport molaire entre les ions sodium et les atomes d'aluminium en position tétraédrique, le reste étant du potassium, et la zéolite étant agglomérée avec un liant.

2.9 Il reste à décider si la solution technique de ce problème implique une activité inventive ou non.

2.9.1 Le requérant argumentait que le liant et sa concentration ne participent en rien à la résolution du problème technique pour les raisons suivantes:

Le liant n'a qu'une capacité négligeable d'adsorption de gaz (document (2), page 23, ligne 14). Selon les documents (2), (3) et (4), il était connu d'utiliser moins que 20%, entre 15 et 25% aussi bien que entre 1 et 40% de liant, respectivement. Le document (4) divulguait

l'argile et le kaolin comme liant qui ont été également cités dans le brevet contesté.

De plus, le cation sodium n'a pas été choisi parmi un grand nombre de cations d'échange puisque l'exemple 1 du document (1) porte sur une zéolite de type NaLSX où seuls quelques cations à savoir Li et Ca et, d'une manière générale, les terres rares sont exemplifiés. Comme le document (1) enseigne que la zéolite doit avoir substantiellement tous ses cations sous forme sodium, l'homme du métier aurait testé les valeurs élevées d'échange en sodium et serait obligatoirement arrivé aux valeurs de 100% ou presque. Finalement, il n'y aurait pas eu d'effet surprenant pour ce qui est de la capacité d'adsorption en CO<sub>2</sub>.

#### 2.9.2 La Chambre n'accepte pas ces arguments.

Le document (1) ne divulgue pas de liant, ni explicitement, ni implicitement et ne divulgue pas non plus un taux d'échange au sodium d'au moins 98% pour une zéolite du type NaLSX (voir point 1.4).

Le document (2) n'enseigne pas d'agglomérer une zéolite du type NaLSX, mais une zéolite du type X avec un liant. Elle ne divulgue que deux options, la première consistant à agglomérer en absence d'un liant et la deuxième à agglomérer avec un liant jusqu'à une concentration de moins de 20%. Mais ce document ne préconise pas d'avantages quelconques qu'on pourrait obtenir en utilisant un liant.

La Chambre conclut que le document (2) n'inciterait pas l'homme du métier à agglomérer la zéolite avec un liant.

Le document (3) ne divulgue pas de zéolite du type NaLSX mais uniquement du type X ou A. Les documents (4) et (5) divulguent des zéolites de type X, mais non du type NaLSX.

Le document (6) constitue le brevet de base pour la synthèse des zéolites de type X. Un homme du métier mettant en œuvre la qualité minimale de source de silice de façon à avoir un rapport atomique Si/Al voisin de 1, n'obtiendrait cependant pas une zéolite du type LSX mais un mélange du type zéolite X et d'une forme cristalline de zéolite, en l'occurrence la zéolite A. Ceci n'a pas été contesté par le requérant.

Les zéolites de type LSX peuvent être synthétisées selon l'enseignement du document (7), le procédé de synthèse étant différent de celui divulgué dans le document (6) auquel il a été référé dans le document (8) (voir colonne 2, lignes 17 à 19). Les documents (6) et (8) concernent des zéolites de type X.

Les zéolites synthétisées selon le document (7) contiennent en général environ 25% d'ions potassium. De plus, il est nécessaire de pratiquer plusieurs échanges successifs potassium-sodium pour arriver à un taux d'échange en sodium au-delà de 90%. Par conséquent, l'échange de cations au sodium jusqu'à un taux au-dessus de 98% n'était pas évident.

- 2.10 Il s'ensuit que l'objet de la revendication 1 implique une activité inventive, et par conséquent, satisfait aux conditions énoncées à l'article 56 CBE.

Comme l'objet de la revendication indépendante 8 concerne également un procédé comprenant un adsorbant essentiellement constitué d'une zéolite de type NaLSX identique à celle de la revendication 1, la brevetabilité de l'objet de cette revendication découle de la brevetabilité de la revendication 1. Il en est de même pour les revendications 2 à 7 dépendant de la revendication 1 ainsi que pour la revendication 9 dépendant de la revendication 8.

3. Les motifs invoqués à l'appui de l'opposition de fond par conséquent pas obstacle au maintien du brevet tel que délivré.
4. Remboursement de la taxe de recours.

Selon la règle 67 CBE le remboursement de la taxe de recours est ordonné lorsqu'il est fait droit au recours, si le remboursement est équitable en raison d'un vice substantiel de procédure.

Comme il n'est pas fait droit au recours, la Chambre n'a pas à statuer sur l'équité du remboursement.

## Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

Le recours est rejeté.

La demande de remboursement de la taxe de recours est rejetée.

La greffe:

Le Président:

G. Rauh

P.-P. Bracke