

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 6 février 2008**

N° du recours : T 0154/05 - 3.3.10

N° de la demande : 97400754.4

N° de la publication : 0805136

C.I.B. : C07C 17/20

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :
Procédé de fabrication du difluorométhane

Titulaire du brevet :
ARKEMA FRANCE

Opposant :
Honeywell International, Inc.

Référence :
Difluorométhane/ARKEMA

Normes juridiques appliquées :
CBE Art. 56

Mot-clé :
"Activité inventive (oui)"

Décisions citées :
-

Exergue :
-



N° du recours : T 0154/05 - 3.3.10

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.10
du 6 février 2008

Requérant :
(Titulaire du brevet)

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

Mandataire :

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

Intimé :
(Opposant)

Honeywell International, Inc.
101 Columbia Road
Morristown, NJ 07962-2245 (US)

Mandataire :

Hucker, Charlotte Jane
Gill Jennings & Every LLP
Broadgate House
7 Eldon Street
London EC2M 7LH (GB)

Décision attaquée :

Décision de la division d'opposition de
l'Office européen des brevets postée le
9 décembre 2004 par laquelle le brevet
européen n° 0805136 a été révoqué conformément
aux dispositions de l'article 102(1) CBE 1973.

Composition de la Chambre :

Président : R. Freimuth
Membres : J.-C. Schmid
J.-P. Seitz

Exposé des faits et conclusions

I. Le requérant (propriétaire du brevet) a introduit un recours le 3 février 2005 contre la décision de la division d'opposition de révocation du brevet européen n° 805 136, signifiée par voie postale le 9 décembre 2004; la revendication 1 du brevet délivré s'énonçant comme suit:

"1. Procédé continu de fabrication du difluorométhane (F32) à partir de chlorure de méthylène (F30) et d'acide fluorhydrique en phase gazeuse en présence d'un catalyseur de fluoration, caractérisé en ce que l'on effectue la réaction en présence de chlore, que l'on soumet le flux gazeux sortant du réacteur à une distillation pour séparer en tête un flux contenant la quasi-totalité de l'acide chlorhydrique et au moins 90% du F32 produits par la réaction et en pied un flux contenant au moins 90% des réactifs non transformés (F30, F31 et HF) présents dans le flux gazeux sortant du réacteur, et on recycle directement au réacteur le flux récupéré en pied de distillation, sans aucune opération de purification."

II. Une opposition avait été formée par l'intimé (opposant) en vue d'obtenir l'entière révocation du brevet motifs pris de manque d'activité inventive, d'insuffisance d'exposé de l'invention (Article 100 (b) CBE) et d'extension de l'objet du brevet au-delà de la demande telle que déposée, le premier fondé notamment sur les documents

(1) EP-A-0 669 303,

(3) US-A-3 385 794,

- (4) US-H-1129 et
- (6) JP-A-49 134 612.

III. La division d'opposition a considéré que l'objet du brevet ne s'étendait pas au-delà de la demande telle que déposée, que l'invention était suffisamment exposée pour que l'homme du métier la pût réaliser, mais que l'objet des revendications telles que délivrées manquait d'activité inventive.

En ce qui concerne l'introduction à la page 4, lignes 6 à 9 du brevet litigieux de la définition du terme "organique" par la citation spécifique des composés F20, F21, F22, F112 et F113, la division d'opposition a considéré que ces composés, faisant suite à l'expression "tel que", étaient cités à titre purement facultatif et que cette énumération était supportée par l'exemple 2 de la demande originale.

La division d'opposition n'a pas vu de contradiction entre l'expression "quasi-totalité de l'acide chlorhydrique" de la revendication 1 et celle "l'essentiel de" de la page 4, ligne 26, et en a conclu que l'objection d'insuffisance d'exposé basée sur telle prétendue contradiction était injustifiée.

Le problème technique à résoudre vis-à-vis du document (1) représentant l'art antérieur le plus proche était la mise à disposition d'un procédé de production du F32 possédant une bonne productivité. La solution d'ajouter du chlore était évidente au regard du document (3) qui traitait de la régénération d'un catalyseur de fluoration par traitement avec le chlore.

IV. Lors de la procédure orale tenue devant la Chambre le 6 février 2008, le requérant a défendu au principal son brevet, tel que délivré, ou subsidiairement sur le fondement de six requêtes auxiliaires. En ce qui concerne l'activité inventive, il a fait valoir les arguments suivants:

Le problème technique à résoudre en partant du document (1) qui représente l'art antérieur le plus proche était de proposer un procédé de fluoration du chlorure de méthylène (F30; CH_2Cl_2) aboutissant à une forte productivité en difluorométhane (F32; CH_2F_2) en présence des impuretés recyclées.

Le problème tenant aux impuretés était inhérent à toute réaction chimique (produit secondaires, produits non réagis) et se posait dans le cas présent puisqu'amplifié par le recyclage.

L'exemple 2 du brevet montrait clairement que ce problème était résolu par le procédé revendiqué.

Le document (3) décrivait la stabilisation des catalyseurs à base de chrome par addition de chlore au cours de la réaction de fluoration ou en l'absence de produits à fluorer dans le cas où l'on pouvait craindre une chloration indésirable. Ce document envisageait donc deux modes distincts de stabilisation du catalyseur. Dans l'exemple 1, le chlorure de méthylène a été utilisé principalement en tant que désactivateur du catalyseur dans la réaction de fluoration du tétrachlorure de carbone. Dans ce seul mode de réalisation décrivant une fluoration du chlorure de méthylène, la régénération du catalyseur a été mise en œuvre par l'interruption du

procédé de fluoration, le traitement du catalyseur en présence de chlore a donc été effectué en l'absence de produits à fluorer. L'homme du métier aurait conclu à la lecture du document (3) à un effet négatif de la présence de chlore dans la réaction de fluoration du chlorure de méthylène. D'autre part, le document (3) n'envisageait en aucune façon la fluoration du chlorure de méthylène en présence de chlore. La mention du chlorure de méthylène dans la partie introductive du document (3) se référait uniquement à ses propriétés de désactivation de catalyseurs de fluoration et n'était pas en relation directe avec le procédé objet de la divulgation du document (3).

Le document (4) quant à lui concernait un procédé de préparation du tetrafluoro-1,1,1,2-éthane (F134a), et donc une réaction totalement différente. Un tel procédé était uniquement extrapolable aux procédés de fluoration des composés de formule CA_3CH_2-X , où A représentait un atome d'halogène, qui provoquaient des réactions secondaires de déhydrohalogénéation bloquant le catalyseur qui ne pouvaient avoir lieu avec le chlorure de méthylène. Ce document concernait donc un domaine technique éloigné que l'homme du métier n'aurait pas considéré pour résoudre le problème technique à la base de l'invention. D'autre part, la productivité était très faible et, par conséquent, pour cette raison déjà, l'homme du métier n'aurait pas envisagé trouver dans ce document une solution au problème posé.

- V. Selon l'intimé, l'art antérieur le plus proche était le document (1). Le problème technique n'était pas résolu sur toute la portée revendiquée étant donné qu'aucune limite supérieure concernant la quantité de chlore

n'était indiquée, ce qui revenait à couvrir des mises en œuvre conduisant à de faibles sélectivités. D'autre part, il était douteux qu'un problème de produits secondaires ou de productivité existât dans le procédé de fluoration du chlorure de méthylène, dès lors que les exemples comparatifs du brevet litigieux n'illustraient tel problème qu'avec une régénération du catalyseur à l'aide de l'oxygène, l'exemple comparatif 1 effectué sans régénération du catalyseur ne faisant quant à lui pas apparaître ce problème.

La solution revendiquée découlait de manière évidente de l'état de la technique. Le document (3) envisageait clairement un procédé de fluoration du chlorure de méthylène. La partie introductive du document relative à l'inconvénient du chlorure de méthylène dû à ses propriétés de désactivation sur les catalyseurs de fluoration était suivie par la description de la façon selon laquelle il avait déjà été pallié dans l'art antérieur à ces inconvénients, c'est-à-dire par un traitement par l'oxygène. Ce passage était directement suivi par la solution du traitement du catalyseur par le chlore propre au document. De plus, il était explicitement mentionné que le traitement par le chlore était effectué dans un procédé dans lequel le catalyseur était utilisé comme catalyseur de fluoration, donc dans un procédé de fluoration. Cela établissait donc clairement qu'un procédé de fluoration du chlorure de méthylène était envisagé. Ce document proposait deux solutions alternatives pour pallier à la désactivation du catalyseur, c'est-à-dire son traitement par le chlore, soit pendant la réaction de fluoration, soit lors d'une interruption de ladite réaction. Un moyen de précaution était énoncé indiquant que la première de ces solutions

alternatives était applicable dans le cas où le produit à fluorer ne réagirait pas ou faiblement avec le chlore dans les conditions réactionnelles. Les hydrocarbures perhalogénés, le chlorure de trichloroacétyle et le chloral étaient cités en illustration de substrats remplissant ces conditions, sans que cela ne limitât toutefois l'enseignement du document à ces seules exemplifications et constituât une quelconque dissuasion à l'encontre d'un procédé de fluoration de chlorure de méthylène en présence de chlore. D'autre part, afin d'éviter une réaction secondaire avec le chlore, ce document soulignait l'égale importance des conditions réactionnelles comme des produits de départ à fluorer. Sachant dès lors qu'une réaction avec le chlore dépendait tout autant des conditions réactionnelles que du substrat, l'homme du métier aurait sélectionné sans effort inventif les conditions opératoires permettant d'opérer la fluoration du chlorure de méthylène en présence de chlore et serait ainsi arrivé sans ingénuité particulière à l'invention prétendue.

Une réaction de fluoration en présence de chlore afin de maintenir l'activité du catalyseur était également rapportée dans le document (4), relatif à la fluoration de chloro-2-trifluoro-1,1,1-éthane (F133a) en présence de chlore pour préparer le tétrafluoro-1,1,1,2-éthane (F134a). Ce document inciterait de même l'homme du métier à mettre en œuvre le procédé revendiqué. En effet, il résultait à l'évidence du document

- (7) Organic Chemistry, R.T. Morrison and R.N. Boyd, Allyn and Bacon Inc, Boston, US, Third Edition, 1973, Chapter 3 "Alcanes", pages 100-101

que la réactivité du chlorure de méthylène était inférieure à celle du F133a alors que la réaction de fluoration était comparable ainsi qu'expliqué dans le document

(8) Déclaration de Mr.Hsueh Sung Tung datée du 5/10/2005.

Le blocage du catalyseur par les produits issus de réaction de déhydrohalogénéation du F133a survenait également dans la fluoration du chlorure de méthylène, ces produits étant formés par un autre mécanisme de réaction impliquant des carbènes.

Enfin, le document (6) divulguait également une réaction de fluoration en présence de chlore afin de régénérer le catalyseur. Cet enseignement était applicable à tout type de réaction de fluoration et rendait ainsi la solution proposée évidente.

VI. Le requérant a requis l'annulation de la décision de la division d'opposition et le maintien du brevet tel que délivré, ou subsidiairement, le maintien du brevet sur la base de l'une des requêtes auxiliaires 1 à 6 toutes soumises le 3 janvier 2008.

L'intimé a requis le rejet du recours et le maintien de la décision de révocation du brevet.

VII. La Chambre a rendu sa décision à l'issue de la procédure orale.

Motifs de la décision

Requête principale

1. *Article 100(b) et (c) (CBE).*

Bien que l'extension de l'objet du brevet au-delà de la demande telle que déposée et l'insuffisance de description de l'invention soient des motifs originaires d'opposition, l'intimé n'a pas maintenu en cause d'appel ces objections, alors même que la division d'opposition avait rejeté ces motifs. Il s'en suit que la Chambre n'a aucune raison de diverger sur ce point de la décision attaquée et il n'est ainsi pas nécessaire de donner plus avant les raisons pour lesquelles ces motifs d'opposition n'affectent en rien le brevet.

2. *Activité inventive*

En suivant l'approche problème/solution appliquée de manière constante par les Chambres de recours en vue d'apprécier l'activité inventive sur une base objective, il est nécessaire de procéder en premier lieu à l'identification de l'art antérieur le plus proche qui permettra ensuite de déterminer le problème technique pouvant être considéré comme résolu vis-à-vis de cet art antérieur le plus proche et finalement d'apprécier l'évidence de la solution proposée, reflétée par les caractéristiques techniques de la revendication, à la lumière de l'état de la technique.

2.1 Le document (1) décrit un procédé continu de fabrication du difluorométhane à partir de chlorure de méthylène et d'acide fluorhydrique en phase gazeuse en présence d'un

catalyseur de fluoration. Le flux gazeux sortant du réacteur est soumis à une distillation pour séparer en tête un flux contenant l'acide chlorhydrique et le difluorométhane et en pied de distillation un flux contenant les réactifs non transformés (chlorure de méthylène, F31 et HF) présents dans le flux gazeux sortant du réacteur qui sont directement recyclés dans le réacteur, sans aucune opération de purification (revendication 6; page 9, exemple 5; figure 4; page 5, lignes 27 à 38).

D'accord en cela avec les Parties, la Chambre considère que ce document constitue l'état de la technique le plus proche et donc le point de départ pour l'analyse de l'activité inventive. La Chambre constate par ailleurs que ce même document (1) a été également considéré par la Division d'Opposition comme l'art antérieur le plus proche.

- 2.2 Le requérant a fait valoir que le problème technique à résoudre vis-à-vis du document (1) était la mise à disposition d'un procédé de fluoration du chlorure de méthylène (CH_2Cl_2) aboutissant à une forte productivité en F32 (CH_2F_2) en présence des impuretés recyclées.
- 2.3 La solution proposée par le brevet en litige est le procédé selon revendication 1 caractérisée en ce qu'on opère la réaction en présence de chlore.
- 2.4 Le requérant s'est référé à l'exemple 2 pour démontrer que ce problème aurait effectivement été résolu par les compositions revendiquées.

L'intimé a contesté que le problème technique indiqué ci-dessus ait été résolu dans la portée revendiquée étant donné que la revendication 1 n'établissait aucune limite supérieure concernant la quantité de chlore, ce qui revenait à couvrir des mises en œuvre conduisant à de faibles productivités. Toutefois, l'intimée n'a soumis aucun fait susceptible de rendre crédible telle affirmation, alors même que la charge de la preuve lui en incombait. La Chambre, de son côté, au vu de l'exemple 2 du brevet, n'a aucune raison de douter que le problème technique ne soit résolu dans toute la portée revendiquée.

2.5 Il reste à déterminer si la solution proposée par le brevet litigieux au problème posé découle à l'évidence de l'état de la technique disponible, notamment au vu de l'enseignement des documents (3), (4) ou (6).

2.5.1 Le document (3) concerne de façon générale un procédé de stabilisation d'un catalyseur de fluoration à base d'oxyfluorure de chrome au moyen d'un courant de chlore passant sur ledit catalyseur (colonne 1, lignes 35 à 40), dont l'utilisation est bien connue dans les procédés de fluoration des composés aliphatiques carbonés et halogénés, notamment le chlorure de méthylène (colonne 1, lignes 13 à 29).

L'intimé s'est appuyé, d'une part, sur la divulgation constituée par la revendication 3 du document (3) qui décrit un procédé pour activer ou stabiliser un catalyseur à base d'oxyfluorure de chrome consistant à faire passer un courant de chlore à une température comprise entre 100°C et 500°C en présence de fluorure d'hydrogène et d'un composé carboné halogéné qui est

fluoré au moyen dudit catalyseur et, d'autre part, sur la mention du chlorure de méthylène aux lignes 28 et 29 de la colonne 1.

Cependant, le document (3) décrit deux modes de réalisation distincts, d'une part, un procédé de stabilisation du catalyseur par un courant de chlore au cours de la fluoration du composé aliphatique carboné et halogéné (procédé en continu) et, d'autre part, un procédé dans lequel le catalyseur est régénéré en l'absence de produits à fluorer (procédé en discontinu), (cf. colonne 1, lignes 42 à 70). Or, ce document indique qu'une condition pour opérer en continu doit être que les composés organiques à fluorer ne réagissent avec le chlore que dans une faible mesure tels les paraffines perhalogénées, le chlorure de trichloroacétyle ou le chloral (cf. colonne 1, lignes 42 à 50). Cependant, ces composés diffèrent suffisamment du chlorure de méthylène par l'absence d'hydrogène réactif pour que l'homme du métier ne soit pas incité à appliquer cet enseignement au chlorure de méthylène qui lui comporte deux atomes d'hydrogène. Le lecteur averti ne comprendrait donc pas au vu de ce passage de la description que le chlorure de méthylène puisse être fluoré alors que le catalyseur est stabilisé *in situ* par un courant de chlore. Cette réticence est renforcée par l'indication selon laquelle si une chloration indésirable du composé à fluorer est possible ou si le catalyseur a déjà été désactivé du fait de son utilisation dans des réactions de fluoration, le procédé de fluoration doit être interrompu, la régénération du catalyseur s'effectuant en l'absence du composé organique à fluorer (cf. colonne 1, lignes 60 à 66). De plus, l'exemple 1, le seul relatif à la fluoration du chlorure de méthylène, décrit un procédé

en discontinu, c'est à dire avec interruption du procédé et régénération séparée du catalyseur par un courant de chlore (cf. colonne 2, lignes 57 à 62 et 68 à 72). Dans ces circonstances, il importe peu que le chlorure de méthylène soit mentionné colonne 1 du document (3) dans la discussion de l'état de la technique en tant que composé carboné et halogéné, faute d'un lien de causalité quelconque entre un procédé de fluoration du chlorure de méthylène et l'alternative de l'introduction du chlore en cours de la réaction de fluoration.

L'enseignement du document (3) loin de suggérer à l'homme du métier la solution revendiquée contient plutôt un avertissement à l'encontre de cette solution. Il est vrai comme l'a souligné l'intimé que la liste des composés pouvant être fluorés en présence de chlore n'est pas exclusive. Cependant, la Chambre doit constater que l'analyse de l'intimé incluant le chlorure de méthylène dans cette liste est faite *a posteriori* connaissances prises de l'invention et ne découle pas d'elle-même de l'enseignement du document (3).

- 2.5.2 L'intimé a prétendu que la solution proposée était également évidente au vu du document (4). Ce document concerne un procédé de fluoration du chloro-2-trifluoro-1,1,1-éthane (F133a) pour préparer le tétrafluoro-1,1,1,2-éthane (F134a) consistant à co-introduire avec le fluorure d'hydrogène une quantité efficace de chlore. Cependant la Chambre observe que ce document est relatif à la fluoration d'un composé structurellement bien différent du chlorure de méthylène. La question se pose donc de savoir si l'homme du métier désire résoudre le problème technique indiqué ci-dessus aurait eu quelque raison de considérer l'enseignement de ce document.

Comme indiqué ci-dessus, ce document traite exclusivement de la substitution d'un atome de chlore par un atome de fluor dans la préparation de tétrafluoro-1,1,1,2-éthane (F134a) à partir de chloro-2-trifluoro-1,1,1-éthane (F133a). Selon ce document, on observe rapidement une inactivation du catalyseur due à une réaction de déhydrohalogénéation conduisant à des composés oléfiniques. Or, une telle réaction de déhydrohalogénéation ne peut avoir lieu avec le chlorure de méthylène comme substrat. Les réactions chimiques conduisant à l'inactivation du catalyseur étant différentes dans le cas du chlorure de méthylène et du chloro-2-trifluoro-1,1,1-éthane, l'homme du métier n'aurait eu aucune raison de considérer ce document pour essayer de résoudre le problème technique défini ci-dessus. Il résulte de ce qui précède que le procédé revendiqué ne découle pas de manière évidente de l'enseignement technique constitué par les documents (1) et (4).

Quant à la similitude de comportement de CH_2Cl_2 et de F133a soutenue dans la déclaration (8) s'appuyant sur le document (7), il est à noter que le document (8) est une déclaration d'un expert qui ne reflète qu'une opinion personnelle et comme telle n'a pas plus d'importance que l'argumentation des parties. Un document de l'art antérieur doit être apprécié de manière objective et non pas tel que lu par l'une des parties à la procédure. La page citée du document (7) relate de la différence de réactivité du méthane et de l'éthane en présence de chlore et de lumière. Il s'agit donc d'une réaction d'halogénéation radicalaire différente de celle qui serait effectuée en présence d'un catalyseur, de surcroît sur des substrats différents. Rien ne vient

donc corroborer une similitude de comportement respectif du chlorure de méthylène et du chloro-2-trifluoro-1,1,1-éthane vis-à-vis d'une réaction catalytique de fluoration en présence de chlore.

2.5.3 Enfin, le document (6) est relatif à la stabilisation du catalyseur par un courant de chlore dans la réaction de disproportionnement, c'est-à-dire d'échange d'atomes de chlore et de fluor entre deux molécules (cf. première page, colonne de droite, lignes 4 à 7). Une telle réaction est différente de celle intervenant dans le procédé revendiqué, à savoir la réaction du fluorure d'hydrogène avec le chlorure de méthylène. L'homme du métier n'aurait eu en conséquence aucune raison de considérer ce document pour résoudre le problème technique défini ci-dessus.

2.6 De ce qui précède, la Chambre arrive à la conclusion que l'objet de la revendication 1 ne découle pas de manière évidente de l'état de la technique citée. Cette conclusion s'applique également aux revendications dépendantes 2 à 7 qui représentent des modes de réalisations particuliers de la revendication 1.

3. La Chambre faisant droit à la requête principale, il n'y a lieu de statuer sur les requêtes subsidiaires 1 à 6 de rang inférieur.

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

1. La décision attaquée est annulée
2. Le brevet est maintenu tel que délivré.

Le greffier

Le Président

P. Cremona

R. Freimuth