

**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 2 mars 2012**

**N° du recours :** T 0083/10 - 3.3.06

**N° de la demande :** 02292754.5

**N° de la publication :** 1312406

**C.I.B. :** B01D 53/047, B01D 53/04,  
C01B 3/56

**Langue de la procédure :** FR

**Titre de l'invention :**  
Procédé de purification de gaz de synthèse

**Titulaire du brevet :**  
CECA S.A.

**Opposant :**  
Linde AG

**Référence :**  
Purification de gaz de synthèse/CECA

**Normes juridiques appliquées :**  
CBE Art. 54(1)(2), 56

**Mot-clé :**  
"Nouveauté (oui)"  
"Activité inventive (oui): solution du problème technique  
sous-jacent à l'invention pas évident"

**Décisions citées :**  
-

**Exergue :**  
-



N° du recours : T 0083/10 - 3.3.06

**D E C I S I O N**  
de la Chambre de recours technique 3.3.06  
du 2 mars 2012

**Requérant I :** CECA S.A.  
(Titulaire du brevet) 89, Boulevard National  
F-92250 La Garenne Colombes (FR)

**Mandataire :** Lhoste, Catherine  
ARKEMA FRANCE  
Département Propriété Industrielle  
420 Rue d'Estienne d'Orves  
F-92705 Colombes Cedex (FR)

**Requérant II :** Linde AG  
(Opposant) Leopoldstrasse 252  
D-80807 München (DE)

**Mandataire :** Zahn, Christoph  
Linde AG  
Patente und Marken  
Dr.-Carl-von-Linde-Straße 6-14  
D-82049 Pullach (DE)

**Décision attaquée :** **Décision intermédiaire de la division  
d'opposition de l'Office européen des brevets  
postée le 10 novembre 2009 concernant le  
maintien du brevet européen n° 1312406 dans  
une forme modifiée.**

**Composition de la Chambre :**

**Président :** P.-P. Bracke  
**Membres :** L. Li Voti  
U. Tronser

## **Exposé des faits et conclusions**

I. Le recours fait suite à la décision de la division d'opposition de maintenir sous forme modifiée le brevet européen n° 1 312 406, concernant un procédé de purification de gaz de synthèse.

Le brevet a été délivré avec la revendication 1 suivante:

"1. Procédé de purification de gaz de synthèse à base d'hydrogène et de monoxyde de carbone et/ou d'azote pollué par du dioxyde de carbone et une ou plusieurs éventuelles autres impuretés, comprenant un ou plusieurs cycles comprenant les étapes successives suivantes :

a) faire passer le mélange gazeux à purifier dans une zone d'adsorption comprenant :

- un adsorbant susceptible d'adsorber sélectivement le dioxyde de carbone, qui comprend au moins une zéolite X du type faujasite de rapport Si/Al voisin de 1, de préférence allant de 0,9 et 1,1, et avantageusement allant de 1 à 1,05, dont au moins 70% et de préférence au moins 90 % des sites échangeables sont occupés par des ions sodium ; le reste des sites cationiques étant occupés par des cations de type K, Ca, ou par d'autres cations mono- et/ou polyvalents (magnésium, strontium, baryum, lanthanides ou terres-rares, etc.),

- un ou plusieurs adsorbants susceptibles d'adsorber sélectivement chacune des impuretés, telles que l'eau, les hydrocarbures et/ou les NOx, les adsorbants étant soit mélangés intimement soit sous forme de lits distincts en couches successives,

b) désorber le dioxyde de carbone et la ou les autres impuretés adsorbés sur le ou les adsorbants décrits sous a) par instauration d'une augmentation de température et/ou d'une diminution de pression, cette étape pouvant être complétée par une phase de purge consistant à recycler une partie du gaz purifié ;  
c) remonter en pression ladite zone d'adsorption par introduction d'un courant de gaz purifié par la sortie de la zone d'adsorption et/ou refroidir la zone d'adsorption par balayage de gaz froid purifié."

Les revendications 2 à 10 du brevet délivré sont dépendantes de la revendication 1.

II. Une opposition a été formée à l'encontre du brevet européen précité sur le fondement de l'article 100(a) CBE 1973, en particulier l'absence de nouveauté et d'activité inventive de l'objet revendiqué.

A l'appui de l'opposition, l'Opposante a cité, entre autres, les documents suivants:

- (1): FR-A-2775617 et
- (3): EP-A-1120149.

III. La division d'opposition a fait remarquer dans sa décision que le terme "gaz de synthèse" utilisé dans la revendication 1 est bien connu et indique normalement un gaz contenant une quantité variable de monoxyde de carbone et d'hydrogène; toutefois elle a estimé que la formulation de la revendication 1 telle que délivrée est plus large et embrasse aussi la purification d'un gaz à base d'azote pollué par du dioxyde de carbone, c'est-à-dire, la purification de l'air. Par conséquent, l'objet

de cette revendication n'est pas nouveau par rapport à la divulgation du document (1).

De plus, toujours selon la division d'opposition, l'objet de la revendication 1 modifiée selon la requête subsidiaire 1 n'est pas nouveau à l'égard du document (3). Ce document décrit dans son exemple un procédé dans lequel un gaz de synthèse est purifié dans une zone d'adsorption contenant aussi une couche de NaLSX, c'est-à-dire une zéolite X du type faujasite ayant un rapport Si/Al voisin de 1, dont les sites échangeable sont occupés à 100% ou de façon partielle par des ions sodium; cette divulgation recouvre largement la classe des zéolites de la revendication 1.

Enfin, les revendications selon la requête subsidiaire 2 sont nouvelles par rapport à l'état de la technique citée et impliquent aussi une activité inventive, puisqu'il n'aurait pas été évident pour l'homme du métier, au vu de l'enseignement du document (3), que le choix d'une zéolite NaLSX dont au moins 90% des sites échangeables sont occupés par des ions sodium puisse apporter un avantage par rapport à l'utilisation d'autres zéolites également suggérées dans ce document.

IV. L'Opposante et la Titulaire de brevet ont formé un recours à l'encontre de cette décision.

V. L'Opposante a maintenu que

- les documents (1) et (3) détruisent la nouveauté de la revendication 1 telle que délivrée;

- le document (1) représente l'état de la technique le plus proche et le problème technique à résoudre, sous-jacent à l'invention, concerne la purification d'un gaz de synthèse pollué par de faibles quantités en dioxyde de carbone de l'ordre du ppm;

- il est évident pour l'homme du métier que l'enseignement du document (1) est applicable à un gaz de synthèse, le document (1) suggère donc d'utiliser une zéolite selon la revendication 1 pour résoudre le problème technique de l'invention;

- par conséquent, l'objet revendiqué est dépourvu d'activité inventive.

VI. La Titulaire du brevet a soutenu que

- l'objet de la revendication 1 telle que délivrée est nouveau par rapport à l'état de la technique cité;

- le document (3) représente l'état de la technique le plus proche;

- l'état de la technique ne suggère pas l'utilisation d'une zéolite NaLSX dont au moins 70% des sites échangeables sont occupés par des ions sodium pour résoudre le problème technique sous-jacent à l'invention.

VII. La Titulaire du brevet demande l'annulation de la décision contestée et le maintien du brevet sur la base de la requête principale soumise avec la lettre du 2 février 2012 (brevet tel que délivré) ou à titre subsidiaire sur la base d'une des requêtes subsidiaires

1 ou 2 également soumises avec la lettre du 2 février 2012.

VIII. L'Opposante demande que la décision contestée soit annulée et que le brevet soit révoqué.

### **Motifs de la décision**

1. *Requête principale de la Titulaire (brevet tel que délivré)*

1.1 Nouveauté

1.1.1 La revendication 1 concerne un procédé de purification de gaz de synthèse à base d'hydrogène et de monoxyde de carbone et/ou d'azote pollué par du dioxyde de carbone.

Il est bien connu qu'un gaz de synthèse est un gaz produit industriellement qui contient principalement de l'hydrogène et des quantités variables de monoxyde de carbone. Comme expliqué dans les paragraphes 1 et 5 du brevet litigieux, la définition de gaz de synthèse s'étend dans le brevet à des gaz à base d'hydrogène et d'azote.

Dès lors que la formulation de la revendication 1 vise explicitement un procédé de purification d'un gaz de synthèse, elle ne concerne certainement pas la purification d'un gaz à base d'azote sans hydrogène, par exemple l'air, qui ne serait pas considéré comme étant un gaz de synthèse par l'homme du métier.

1.1.2 Le document (1) décrit un procédé de purification de flux gazeux pollués par du dioxyde de carbone et, en particulier, la purification de l'air (page 1, lignes 3 et 4). Il n'est pas contesté que ce document ne décrit pas explicitement la purification d'un gaz de synthèse mais il indique de façon générique que de nombreux gaz issus de procédés industriels contiennent du dioxyde de carbone qu'il convient d'épurer (page 1, lignes 11 et 12).

Selon l'Opposante, étant donné que le document (1) concerne la purification d'un gaz pollué par des faibles quantités en dioxyde de carbone de l'ordre du ppm (page 2, lignes 32 à 34), le terme "flux gazeux" serait interprété par l'homme du métier comme se rapportant seulement à l'air, indiqué explicitement dans la description, ou à un gaz de synthèse, qui serait le seul gaz issu de procédés industriels qui contient des quantités en dioxyde de carbone de l'ordre du ppm.

La Chambre relève que cette interprétation, basée sur une prétendue connaissance générale de l'homme du métier, n'était étayée par aucun élément de preuve et donc ne peut pas être retenue au soutien d'une prétendue divulgation implicite.

Le document (1) ne contient par conséquent aucune divulgation d'une purification d'un gaz de synthèse.

L'objet de la revendication 1 est donc nouveau par rapport au document (1).

1.1.3 Le document (3) décrit l'utilisation d'une couche de zéolite NaLSX dans un adsorbent pour la purification



d'un gaz de synthèse qui contient du dioxyde de carbone (page 5, paragraphes 36 et 37).

Il n'est pas contesté qu'une zéolite NaLSX est une zéolite X de type faujasite ayant un rapport Si/Al voisin de 1.

Cependant, le document (3) ne se rapporte pas explicitement dans le reste de la description à ce type de zéolite et ne donne aucune information sur le taux des sites échangeables occupés par les ions sodium.

Il n'était pas contesté non plus à la procédure orale, qu'ils existent bien des zéolites NaLSX dont le taux des sites échangeables occupés par les ions sodium est inférieur à 70%, qui est la limite inférieure indiquée dans la revendication 1 telle que délivrée.

De plus, la simple mention d'une zéolite NaLSX divulgue seulement la classe générale des composés mais pas un produit spécifique compris dans cette classe. Par conséquent, elle ne contient aucune divulgation implicite d'un taux spécifique des sites échangeables occupés par les ions sodium.

La Chambre conclut que le document (3) ne décrit pas l'utilisation de la zéolite spécifique utilisée selon la revendication 1 telle que délivrée.

1.1.4 Par conséquent, l'objet des revendications telles que délivrées est nouveau par rapport à l'état de la technique cité.

## 1.2 Activité inventive

1.2.1 La revendication 1 selon la requête principale concerne un procédé de purification de gaz de synthèse à base d'hydrogène et de monoxyde de carbone et/ou d'azote pollué par du dioxyde de carbone.

1.2.2 Le brevet litigieux expose que la purification des gaz de synthèse est souvent nécessaire, par exemple lorsqu'on souhaite séparer soit CO et H<sub>2</sub>, soit N<sub>2</sub> et H<sub>2</sub> (paragraphe 6 du brevet litigieux).

Les procédés de purification de gaz de synthèse par adsorption utilisent de manière classique pour l'adsorption du CO<sub>2</sub> des adsorbants à base de zéolite de type 4A (Na A) ou 13X (Na X avec rapport atomique Si/Al  $\geq 1,25 \pm 0,05$ ); ces adsorbants présentent cependant l'inconvénient de permettre des temps de cycles d'adsorption/désorption relativement courts ce qui nécessite des régénérations assez fréquentes de la matière adsorbant et augmente le coût de fonctionnement de l'unité industrielle d'adsorption (paragraphe 8).

De plus l'adsorption du CO<sub>2</sub> en présence d'autres impuretés, tel que le monoxyde de carbone, qui sont contenues aussi généralement dans un gaz de synthèse, est plus difficile (paragraphe 19 et 44).

Selon la description du brevet litigieux, l'invention a donc pour but de formuler un procédé de purification de gaz de synthèse pollué par du dioxyde de carbone qui permet des temps de cycles d'adsorption/désorption relativement plus longs et donc des régénérations moins fréquentes de la matière adsorbante (paragraphe 10).

Par conséquent, bien que la description du brevet litigieux précise que le procédé est particulièrement adapté lorsque les concentrations en CO<sub>2</sub> à purifier sont égales ou inférieure à 1.000 ppm (paragraphe 20), la Chambre ne peut pas partager l'avis de l'Opposante selon lequel le problème technique à résoudre, sous-jacent à l'invention, concerne simplement la purification d'un gaz de synthèse pollué par des faibles quantités en dioxyde de carbone de l'ordre du ppm.

1.2.3 Le document (1) concerne le problème technique consistant à améliorer la purification de flux gazeux en général pollués par des quantités faibles de dioxyde de carbone au moyen d'une zéolite NaLSX (voir page 1, lignes 2 à 4 en combinaison avec la page 2, lignes 27 à 37), mais il ne concerne pas une purification de gaz de synthèse qui permet des temps de cycles d'adsorption/désorption relativement plus longs et donc des régénérations moins fréquentes de la matière adsorbante.

Le document (3) concerne une purification améliorée d'un mélange gazeux, qui peut être un gaz de synthèse, par adsorption des impuretés tel que le dioxyde de carbone (page 2, paragraphes 1, 3 et 6 et page 3, paragraphe 29) et il concerne l'optimisation des cycles d'adsorption/désorption pour améliorer le rendement du procédé (voir page 6, paragraphes 58, 59).

La Chambre est donc d'avis que le document (3), étant le seul document qui concerne explicitement la purification d'un gaz de synthèse et concernant un problème technique plus similaire au problème technique sous-jacent à

l'invention, doit être choisi comme point de départ pour l'évaluation de l'activité inventive.

Au vu des essais comparatifs contenus dans le brevet litigieux par rapport à un procédé utilisant pour l'adsorption du CO<sub>2</sub> une zéolite de type 4A ou de type X avec un rapport Si/Al de 1,23 (voir paragraphe 60), la Chambre ne doute pas que le problème technique indiqué auparavant était en effet résolu par le procédé revendiqué. L'Opposante n'a pas contesté non plus les résultats montrés dans le brevet.

1.2.4 Le document (3) décrit dans l'exemple à la page 5 un procédé de purification de gaz de synthèse à base d'hydrogène, contenant aussi du monoxyde de carbone et du dioxyde de carbone. Selon ce procédé le mélange gazeux à purifier passe dans une zone d'adsorption comprenant plusieurs couches adsorbantes dont une couche peut comprendre une zéolite NaLSX, les impuretés adsorbés sont désorbées par une diminution de pression suivi par une phase de purge et la pression de ladite zone d'adsorption est remontée par introduction d'un courant de gaz purifié (page 5, lignes 20 à 41 en combinaison avec le paragraphe 10).

Par conséquent, le procédé connu du document (3) diffère de l'objet de la revendication 1 au moins en ce qu'il n'utilise pas une zéolite NaLSX spécifique dont au moins 70% des sites échangeables est occupé par des ions sodium (voir point 1.1.3 ci-dessus).

1.2.5 L'exemple du document (3) n'explique pas le but pour lequel la zéolite NaLSX est utilisée et la cite comme alternative à d'autres zéolites comme la zéolite 13X et

la zéolite Li-LSX (page 5, ligne 26). Aussi le passage à la page 4, lignes 27 et 28 de la description, suggère qu'une zéolite de type faujasite dont le rapport Si/Al est compris entre 1 et 1,2, c'est-à-dire une zéolite LSX, peut être utilisé comme alternative à une zéolite de type X, A ou une faujasite dont au moins 70% des sites échangeables sont occupés par des ions Li ou Ca.

De plus, la description indique l'utilisation spécifique de ces types de zéolites seulement pour l'adsorption du monoxyde de carbone et de l'azote (page 2, ligne 27 et page 3, lignes 8 à 11) tandis que les couches de charbon actif sont indiquées pour l'adsorption du dioxyde de carbone (page 2, ligne 26) . En effet, les couches de charbon actif utilisées aussi dans le procédé de l'exemple précité sont responsables selon l'enseignement du document (3) de l'optimisation des cycles d'adsorption/désorption et l'amélioration du rendement (voir page 6, paragraphes 58, 59) .

Le document (3) ne suggère donc pas que le choix d'une NaLSX particulière puisse être utile pour adsorber la CO<sub>2</sub> de façon améliorée et pour permettre d'allonger les cycles d'adsorption/désorption.

1.2.6 De plus, l'exemple du document (3) concerne la purification d'un gaz de synthèse ayant une concentration très élevée en CO<sub>2</sub> (24%), tandis que le document (1) concerne plus particulièrement la purification de l'air ayant une concentration faible en CO<sub>2</sub> de l'ordre du ppm (voir point 1.2.3 ci-dessus). Par conséquent, bien que le document (1) suggère d'utiliser une NaLSX dont au moins 98% des sites échangeables est occupé par des ions sodium (page 2, lignes 31 à 37),

l'homme du métier n'aurait pas combiné les enseignements des documents (3) et (1).

1.2.7 La Chambre conclut qu'il n'aurait pas été évident pour l'homme du métier, en considérant l'enseignement de l'état de la technique, de s'éloigner de l'enseignement du document (3) et de choisir la zéolite de la revendication 1 pour résoudre le problème technique sous-jacent à l'invention, c'est-à-dire la mise en œuvre d'un procédé de purification de gaz de synthèse pollué par du dioxyde de carbone qui permet des temps de cycles d'adsorption/désorption relativement plus longs et donc des régénérations moins fréquentes de la matière adsorbante.

Par conséquent, l'objet de la revendication 1 telle que délivrée implique une activité inventive.

1.2.8 Les revendications dépendantes impliquent aussi une activité inventive pour les mêmes raisons que celles énoncées supra.

**Dispositif**

**Par ces motifs, il est statué comme suit:**

1. La décision attaquée est annulée.
  
2. Le brevet est maintenu sur la base de la requête principale soumise avec la lettre du 2 février 2012, c'est-à-dire le brevet tel que délivré.

Le Greffier :

Le Président :

D. Magliano

P.-P. Bracke