

Code de distribution interne :

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

**Liste des données pour la décision
du 6 juin 2019**

N° du recours : T 1774/15 - 3.3.10

N° de la demande : 07823502.5

N° de la publication : 2064171

C.I.B. : C07C209/48, C07C211/12

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :

PROCEDE DE FABRICATION D'AMINES PAR HYDROGENATION DE COMPOSES
NITRILES

Titulaire du brevet :

Rhodia Opérations

Opposante :

BASF SE

Référence :

PROCEDE DE FABRICATION D'AMINES / Rhodia

Normes juridiques appliquées :

CBE Art. 54, 56, 100b)

Mot-clé :

Nouveauté - (oui)

Motifs d'opposition - exposé insuffisant (non)

Activité inventive - requête principale (non) - requête
subsidaire (oui)

Décisions citées :

T 0022/81

Exergue :



Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

Boards of Appeal of the
European Patent Office
Richard-Reitzner-Allee 8
85540 Haar
GERMANY
Tel. +49 (0)89 2399-0
Fax +49 (0)89 2399-4465

N° du recours : T 1774/15 - 3.3.10

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.10
du 6 juin 2019

Requérant :

(Opposant)

BASF SE
Carl-Bosch-Strasse 38
67056 Ludwigshafen (DE)

Mandataire :

Féaux de Lacroix, Stefan
Patentanwälte
Isenbruck Bösl Hörschler PartG mbB
Eastsite One
Seckenheimer Landstrasse 4
68163 Mannheim (DE)

Intimé :

(Titulaire du brevet)

Rhodia Opérations
40, rue de La Haie Coq
93306 Aubervilliers (FR)

Mandataire :

Kalhammer, Georg
Lederer & Keller
Patentanwälte Partnerschaft mbB
Unsöldstrasse 2
80538 München (DE)

Décision attaquée :

Décision de la division d'opposition de l'Office européen des brevets postée le 29 juin 2015 par laquelle l'opposition formée à l'égard du brevet européen n° 2064171 a été rejetée conformément aux dispositions de l'article 101(2) CBE.

Composition de la Chambre :

Président P. Gryczka
Membres : J. Schmid
 T. Bokor

Exposé des faits et conclusions

I. Le requérant (opposant) a introduit un recours contre la décision de rejeter son opposition au brevet européen n° 2064171 dont la revendication 1 s'énonce comme suit :

« 1. Procédé continu de synthèse de composés comprenant au moins une fonction amine par hydrogénation d'un composé comprenant au moins une fonction nitrile caractérisé en ce qu'il consiste à :

- ❖ Alimenter un gaz contenant de l'hydrogène et un composé nitrile, dans un réacteur de type piston dans lequel circule un milieu réactionnel comprenant des particules en suspension de catalyseur à base de métal de Raney, une base minérale et de l'eau,
- ❖ soutirer en sortie du réacteur piston, une partie du milieu réactionnel contenant le composé amine après séparation du catalyseur et recycler l'autre partie dans le réacteur piston.
- ❖ recycler le catalyseur séparé dans le réacteur piston.
- ❖ alimenter dans le réacteur piston un flux de catalyseur neuf.

et en ce que, les débits d'alimentation en composés nitriles et/ou en catalyseur dans le réacteur piston sont contrôlés pour maintenir un rapport P entre le nombre de mole de composés nitriles alimentés par unité de temps et le débit massique de catalyseur dans le réacteur piston, compris entre 0,02 et 0.15 mole de composés nitriles par kg de catalyseur pour un catalyseur présentant une activité initiale comprise entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H₂/g de catalyseur/s. »

Une opposition avait été formée par le requérant en vue d'obtenir la révocation du brevet dans sa totalité pour manque de nouveauté et d'activité inventive (Article 100(a) CBE) et pour insuffisance de l'exposé de l'invention (Article 100(b) CBE). Entre autres, les documents suivants ont été cités dans la procédure d'opposition:

- (1) WO-A-98/43940,
- (2) Winnacker, Küchler "Chemische Technik, Prozesse und Produkte", vol. 5, "Organische Zwischenverbindungen, Polymere", 5. Auflage, Wiley VCH-Verlag GmbH & Co. KGaA, 2005, pages 242-244,
- (3) US-B-6 232 488 et,
- (6) John J. McKetta, Encyclopedia of Chemical Processing and Design, 26, 1987, "Heat-Transfer Estimation and Shortcut Methods. 8. to Hydrogen", pages 222 à 237.

II. Selon la division d'opposition, le procédé revendiqué était caractérisé par le maintien d'une valeur du rapport P dans une gamme désirée et d'une valeur d'activité initiale du catalyseur dans une gamme déterminée, P étant défini comme le rapport entre le nombre de mole de composés nitriles alimentés par unité de temps et le débit massique de catalyseur dans le réacteur piston. Les paragraphes [0014] et [0015] du brevet litigieux fournissaient les informations nécessaires pour déterminer le débit massique. Le réglage de l'alimentation en nitrile permettait d'ajuster la valeur de P dans la gamme revendiquée. Le type de catalyseur à mettre en œuvre dans le procédé était divulgué au paragraphe [0029] du brevet litigieux. Des prélèvements pouvaient être effectués à différents endroits du réacteur piston pour déterminer l'activité initiale du catalyseur, et cela ne dépendait

pas du type de catalyseur, de sa surface spécifique, de sa porosité ou de son degré d'agglomération. L'homme du métier pouvait opérer un procédé avec un catalyseur dans le réacteur piston ayant une activité initiale dans la gamme de valeurs indiquée, et la maintenir dans cette gamme. En vue d'obtenir des résultats fiables, il était évident de prendre un adiponitrile de pureté élevée pour déterminer les cinétiques de réaction. L'homme du métier sur la base de ses connaissances générales et au vu des informations fournies dans la description, était donc à même de mettre en œuvre l'invention telle que revendiquée. Le motif visé à l'Article 100(b) CBE ne s'opposait donc pas au maintien du brevet litigieux. L'objet des revendications était nouveau par rapport aux documents (1) à (3) en raison de la combinaison des valeurs de P et de l'activité initiale telles requises par les revendications.

Le document (3) représentait l'état de la technique le plus proche de l'invention. Le problème technique à résoudre consistait en la mise au point d'un procédé continu de synthèse de composés comprenant au moins une fonction amine par hydrogénation d'un composé comprenant au moins une fonction nitrile permettant d'obtenir un produit final contenant de faibles quantités d'impuretés. L'homme du métier ne trouvait pas dans l'art antérieur la solution à ce problème qui consistait à choisir une valeur P combinée à une activité initiale du catalyseur, telles que revendiquées. L'objet des revendications du brevet litigieux impliquait donc une activité inventive.

III. Pendant la procédure orale devant la chambre tenue le 6 juin 2019, l'intimé a défendu son brevet sur la base des revendications du brevet tel que délivré (requête

principale) et des requêtes subsidiaires 1 à 3 déposées avec une lettre datée du 6 mai 2019.

La revendication 1 de la requête subsidiaire 1 diffère de la revendication 1 du brevet tel que délivré en ce que le composé nitrile est l'adiponitrile, l'amine synthétisée étant l'hexaméthylène diamine.

Compte tenu de la décision de la Chambre, les requêtes restantes ne doivent pas être considérées.

- IV. Selon le requérant, l'homme du métier n'était pas en mesure de déterminer l'activité initiale du catalyseur avec la fiabilité nécessaire pour réaliser l'invention, parce que le protocole décrit à cet effet dans le brevet litigieux n'indiquait pas
- la pression d'hydrogène dans le réacteur pendant la réaction,
 - la géométrie du réacteur, du réservoir d'hydrogène et de la conduite les reliant,
 - la nature du catalyseur à utiliser,
 - la prise en compte de réactions secondaires,
 - la pureté de l'ADP,
 - la géométrie de l'agitateur et l'énergie d'agitation,
 - le contrôle de température (réaction exothermique).

La reproduction du protocole pour le même catalyseur conduisait à des valeurs différentes du Δt initial et ainsi mettait en évidence un manque de précision de la méthode de détermination de l'activité initiale, alors que l'invention requérait que l'activité initiale du catalyseur se trouve dans un domaine très étroit. De plus, le paramètre P ne pouvait pas être calculé puisque le brevet n'indiquait pas si l'activité initiale requise s'appliquait au catalyseur frais, usé, ou son mélange, ni l'emplacement dans le réacteur où

l'échantillonnage devait être effectué. Le brevet litigieux ne contenait aucune instruction sur la façon de trouver, produire ou modifier un catalyseur pour obtenir l'activité initiale dans la plage revendiquée, ni comment maintenir cette activité dans cette plage. L'affirmation de la division d'opposition que l'activité initiale du catalyseur pouvait être maintenue en ajoutant du catalyseur frais, ne provenait pas d'une information présente dans le brevet litigieux. Le paramètre P faisait intervenir la quantité de composé nitrile introduite dans le système. Cependant le brevet litigieux n'indiquait pas si le composé nitrile recyclé devait être pris en compte. De plus, le débit du composé nitrile le long du réacteur à piston n'était pas constant en raison de son hydrogénation progressive. Le débit du catalyseur ne pouvait pas non plus être déterminé car les particules de catalyseur ne s'écoulaient pas à la même vitesse que le liquide dans lequel elles étaient en suspension. De plus, les particules de catalyseur s'écoulaient à des vitesses différentes selon leur taille, ce qui compliquait la détermination de la quantité de catalyseur s'écoulant par unité de temps. La quantité de catalyseur à introduire ne pouvait donc pas être calculée à partir de la teneur en catalyseur dans le réacteur. De surcroît, la plage revendiquée du paramètre P était très étroite. Par conséquent, l'invention n'était pas exposée dans le brevet litigieux de manière suffisamment claire et complète pour être effectuée par un homme du métier.

Le document (2) divulguait la production d'hexaméthylènediamine à partir de l'adiponitrile par hydrogénation en présence de catalyseurs de Raney qui étaient constamment retirés du mélange réactionnel et recyclés après régénération, ce qui impliquait que le

rapport entre l'adipodinitrile converti et la quantité de catalyseur présent devait être maintenu à un niveau constant dans une certaine plage afin de pouvoir contrôler la vitesse de réaction dans le réacteur. La modification de la vitesse de réaction en fonction de l'activité du catalyseur faisait partie des connaissances générales de l'homme du métier. Comme la valeur de l'activité initiale et le paramètre P étaient définis de manière arbitraire dans le brevet litigieux, ils ne pouvaient pas être pris en compte pour établir la nouveauté du procédé revendiqué. L'objet des revendications manquait donc de nouveauté par rapport au document (2).

Le document (3) divulguait un procédé d'hydrogénation de l'adiponitrile en 6-aminocapronitrile en présence d'un catalyseur nickel de Raney et/ou cobalt de Raney. Le catalyseur pouvait être séparé du milieu réactionnel. Un catalyseur au nickel de Raney neuf était ajouté pour compenser la désactivation normale du catalyseur. Le taux initial de consommation d'hydrogène pendant l'hydrogénation de l'adiponitrile était déterminé dans l'essai A et correspondait à l'activité initiale du catalyseur du brevet litigieux. Avec les valeurs 24 l d'hydrogène, 1,2 g de catalyseur au nickel en une heure, la valeur l'activité initiale du catalyseur était de 24,79 [$\cdot 10^{-5}$] mol H₂/g de catalyseur/s. Le rapport P selon la revendication 1 du brevet litigieux n'était pas explicitement divulgué dans le document (3). Cependant, la figure 1 du document (3) faisait apparaître un séparateur solide/liquide. De plus, du catalyseur frais ou régénéré et recyclé pouvait être ajouté. Le paramètre P résultait donc implicitement de la divulgation du document (3), car l'homme du métier sachant que le rapport produit/catalyseur devait se situer dans une certaine plage

afin de maintenir une vitesse de réaction constante, adapterait les flux de matériaux individuels en conséquence. De plus, la valeur de P étant arbitrairement défini dans le brevet litigieux, cette caractéristique ne pouvait pas établir la nouveauté de la revendication. L'objet des revendications manquait donc de nouveauté par rapport au document (3).

Le document (3) représentait l'état de la technique le plus proche de l'invention pour l'examen de l'activité inventive. Les exemples 1 et comparatif 2 du brevet litigieux n'étaient pas reproductibles. De plus, ils n'indiquaient pas le taux de conversion en hexamethylenediamine. Le document (6) montrait en outre que la valeur de 1900 ppm de diaminocyclohexane obtenue dans l'exemple 1 du brevet litigieux se situait à l'extrémité supérieure de celles généralement obtenues dans un procédé d'hydrogénation de l'adiponitrile. Il n'était pas crédible qu'un effet relatif à la formation de produits secondaires lors de l'hydrogénation de l'adiponitrile en hexaméthylènediamine s'applique aux procédés de production d'autres composés à fonctions amino pour lesquels d'autres produits secondaires se forment. De plus, un effet montré avec le nickel de Raney n'était pas extrapolable à tous les catalyseurs de type Raney. Le problème technique de la réduction des impuretés n'était donc pas résolu par le procédé revendiqué et devait être reformulé en la mise à disposition d'un procédé alternatif. Le choix arbitraire d'un rapport quantitatif de réactifs et d'une activité catalytique n'impliquait pas d'activité inventive. L'objet des revendications de toutes les requêtes manquait donc d'activité inventive en partant du document (3) comme état de la technique le plus proche de l'invention.

V. Selon l'intimé, l'invention concernait un procédé continu d'hydrogénation caractérisé par le maintien dans le réacteur piston, d'une valeur de rapport P dans une gamme déterminée et d'une valeur d'activité initiale du catalyseur dans une gamme déterminée. Les paragraphes [0014] et [0015] du brevet décrivaient la mesure du débit massique de catalyseur qui servait à calculer le rapport P. Ce rapport P pouvait être maintenu dans la gamme requise par le contrôle de la quantité de composés nitriles introduits dans le réacteur. Les paragraphes [0016] à [0018] du brevet décrivaient la méthode pour mesurer l'activité initiale du catalyseur par la vitesse initiale de la réaction. Cette caractéristique n'était pas restreinte à l'activité du catalyseur avant sa mise en œuvre dans le procédé d'hydrogénation, mais pouvait être mesurée à n'importe quel moment de la vie du catalyseur. Un contrôle des débits d'alimentation en composés nitriles et/ou en catalyseur, permettait de maintenir le rapport P dans la gamme revendiquée. Le maintien de l'activité initiale du catalyseur dans la gamme revendiquée, pouvait être réalisé par exemple en modifiant le débit d'alimentation du catalyseur neuf, ou par une purge où une partie du catalyseur usé était remplacée par du catalyseur neuf. La méthode de détermination de l'activité initiale du catalyseur par mesure des variations de pression d'un réservoir d'hydrogène pour mesurer la vitesse initiale de réaction était connue et décrite en détail aux paragraphes [0016] à [0018]. Le brevet indiquait que la pression dans le réacteur était de 25 bar et était ajustée avec une réserve d'hydrogène reliée au réacteur. La consommation d'hydrogène était évaluée en mesurant la diminution de la pression dans la réserve d'hydrogène. L'homme du métier souhaitant mesurer la consommation d'hydrogène dans un réacteur à une pression de 25 bar, à l'aide d'une réserve

d'hydrogène à 50 bar, pouvait aisément déterminer la géométrie du réacteur et de la réserve. La méthode pour calculer l'activité initiale du catalyseur dans le test réalisé par le requérant différait de la méthode décrite dans l'invention en de nombreux points, entre autres par la pression dans le réacteur (50 bar au lieu de 25 bar), par l'utilisation d'une eau déminéralisée qui n'est pas désaérée à l'argon, par la méthode de lavage et par la manière de purger le réacteur. On ne pouvait donc tirer aucune conclusion de ce test réalisé quant à la précision de mesure de l'activité initiale du catalyseur selon la méthode telle que décrite dans le brevet. La méthode de l'invention indiquait clairement comment mesurer la consommation d'hydrogène, peu importe si elle provenait uniquement de l'hydrogénation de l'adiponitrile, ou encore, d'autres réactions avec des produits secondaires. Le rapport P était clairement défini comme étant le rapport entre le nombre de mole de composés nitriles alimentés par unité de temps et le débit massique du catalyseur. L'invention était par conséquent suffisamment décrite dans le brevet.

Les documents (2) et (3) ne divulquaient ni un rapport P, ni une activité initiale du catalyseur tels que requis par la revendication 1. L'activité initiale du catalyseur utilisé dans le procédé du document (3) ne pouvait pas être déterminée à partir de la divulgation du document. L'objet de la revendication 1 du brevet tel que délivré était donc nouveau par rapport à la divulgation des documents (2) et (3).

L'état de la technique le plus proche de l'invention était le document (3). Ce document divulguait un procédé continu d'hydrogénation de l'adiponitrile en hexaméthylène diamine qui différait du procédé de la

revendication 1 par le rapport P et par l'activité initiale du catalyseur. Une valeur d'activité initiale du catalyseur choisie dans la gamme définie dans la revendication permettait de minimiser à la fois les impuretés DCH et UV comme démontré dans le brevet par l'exemple 1 selon l'invention et l'exemple comparatif.² Cet effet sur la réduction des produits secondaires dans le composé amine final pouvait être extrapolé à l'hydrogénation de tous les composés comprenant au moins une fonction nitrile à l'aide de n'importe quel catalyseur à base de métal de Raney. Aucun des documents de l'art antérieur, pris seul ou en combinaison, n'enseignait de choisir une activité initiale du catalyseur dans la gamme définie dans la revendication 1 de la requête principale, en vue de réduire les impuretés DCH et UV. L'objet des revendications du brevet tel que délivré ou selon l'une des requêtes subsidiaires impliquait donc une activité inventive.

VI. Le requérant (opposant) a demandé l'annulation de la décision contestée et la révocation du brevet.

L'intimé (propriétaire du brevet) a demandé le rejet du recours, et le maintien du brevet tel que délivré (requête principale), ou subsidiairement, le maintien du brevet sous forme modifiée, selon l'une des requêtes subsidiaires 1 à 3 soumises avec la lettre datée du 6 mai 2019.

VII. La Chambre a rendu sa décision à la fin de la procédure orale.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.

Requête principale : brevet tel que délivré

2. *Suffisance de description*

En ce qui concerne la mesure de l'activité initiale du catalyseur, la Chambre observe que le brevet litigieux divulgue un protocole très détaillé sur la détermination de l'activité initiale du catalyseur - voir paragraphes [0017] et [0018]. Le requérant reproche néanmoins à ce protocole l'absence de certains détails, comme la pression d'hydrogène dans le réacteur pendant la réaction, la géométrie du réacteur, du réservoir d'hydrogène et de la conduite les reliant, la nature du catalyseur à utiliser, la pureté de l'adiponitrile (ADN), la géométrie de l'agitateur et l'énergie d'agitation ainsi que le contrôle de température. Cependant le fait que ces détails ne soient pas explicitement mentionnés dans le protocole décrit dans le brevet n'empêche pas l'homme du métier de mettre en œuvre la méthode de mesure selon le protocole opératoire tel que divulgué dans le brevet litigieux pour la détermination de l'activité initiale du catalyseur. En effet, l'homme du métier de manière routinière comblera les détails non explicitement divulgués, par exemple en adaptant la géométrie du dispositif et la pureté de l'adiponitrile utilisé, au protocole divulgué dans le brevet et à la précision de mesure souhaitée. D'autre part, le brevet litigieux donne des consignes sur la température et l'agitation (colonne 4, ligne 45 et 46 - température de consigne de 80°C et vitesse d'agitation à 2000 trs.min⁻¹) et indique la pression d'hydrogène dans le réacteur, à savoir 20 bar avant l'introduction de l'adipodinitrile, puis 25 bar pendant la réaction (voir colonne 4, ligne 44 et colonne 5, lignes 7 et 8).

Le requérant a aussi critiqué le manque de précision de la détermination de l'activité initiale du catalyseur qui doit être établie à l'aide d'une courbe basée sur des mesures expérimentales non précises et de son extrapolation à l'origine amplifiant ainsi la marge d'erreur, alors que l'invention requiert une activité initiale dans un domaine très restreint. A l'appui de son argumentation, le requérant a soumis des résultats expérimentaux montrant que la répétition de mesures de l'activité initiale d'un catalyseur donne des valeurs très différentes. Cependant, le protocole expérimental utilisé par le requérant pour la détermination de l'activité initiale du catalyseur s'écarte en de nombreux points du protocole expérimental très précis décrit dans le brevet, en particulier par la pression d'hydrogène de 50 bar dans le réacteur, ce qui influe la précision de la mesure d'hydrogène consommée. Par conséquent, les essais du requérant ne peuvent pas corroborer un manque de précision de la détermination de l'activité initiale du catalyseur tel que divulguée dans le brevet litigieux.

Selon le requérant, le brevet litigieux ne donnait aucune instruction sur la façon de produire ou modifier un catalyseur pour obtenir l'activité initiale dans la plage revendiquée, ni comment maintenir cette activité dans cette plage. Cependant, ces instructions non présentes dans le brevet litigieux font partie des connaissances générales de l'homme du métier. Il est ainsi courant par exemple de maintenir l'activité initiale d'un catalyseur dans une réaction en remplaçant le catalyseur usé.

Selon le requérant, l'homme du métier n'était pas en mesure de déterminer le paramètre P, car le brevet litigieux n'indiquait pas si le composé nitrile recyclé devait être pris en compte. Cependant, il n'y a aucune

ambiguïté à ce sujet puisque la revendication 1 énonce clairement que le débit d'alimentation en composés nitriles est contrôlé pour maintenir le rapport P qui est défini avec un nombre de mole de composés nitriles **alimentés** par unité de temps.

Selon le requérant, la détermination de la quantité de catalyseur s'écoulant par unité de temps était compliquée par le fait que les particules de catalyseur ne s'écoulent pas à la même vitesse que le liquide dans lequel elles sont en suspension et qu'elles s'écoulent à des vitesses différentes selon leur taille. De plus, le débit du composé nitrile le long du réacteur à piston n'est pas constant en raison de son hydrogénation progressive. L'homme du métier n'était donc pas en mesure d'amener le facteur P, et de le maintenir, dans la gamme étroite revendiquée. Cependant le calcul d'un débit massique d'un catalyseur fait partie des connaissances générales de l'homme du métier qui prend en compte différents paramètres incluant la nature du liquide dans lequel les particules de catalyseur sont en suspension ainsi que les tailles de particules du catalyseur. La consommation progressive de l'adiponitrile lors de la réaction peut aussi être estimée par l'homme du métier. Ces considérations peuvent au plus amener une incertitude sur la valeur du facteur P, mais en aucun cas, ne constituent un empêchement pour calculer le facteur P et le maintenir dans le domaine revendiqué.

La Chambre arrive donc à la conclusion que les objections soulevées par le requérant ne sont pas à même de mettre en doute que l'invention est suffisamment décrite pour être réalisée par l'homme du métier. Le motif visé à l'Article 100(b) CBE ne s'oppose donc pas au maintien du brevet litigieux.

3. *Nouveauté*

Le document (2) divulgue un procédé de préparation de l'hexaméthylènediamine à partir de l'adipodinitrile alors que le document (3) divulgue un procédé d'hydrogénation de dinitriles.

Cependant, il n'y a pas de divulgation dans ces documents du maintien d'un rapport P compris entre 0,02 et 0.15 mole de composés nitriles par kg de catalyseur pour un catalyseur présentant une activité initiale comprise entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur/s.

Le requérant a soutenu qu'avec des valeurs de 24 l d'hydrogène et 1,2 g de catalyseur au nickel de Raney en une heure, la valeur l'activité initiale du catalyseur utilisé dans le procédé du document (3) serait de $24,79 \cdot 10^{-5}$ mol H_2/g de catalyseur/s, et donc conforme à l'activité initiale du catalyseur selon l'invention. Cependant, ce calcul ne correspond pas à la méthode de détermination de l'activité initiale décrite dans le brevet aux paragraphes [0017] et [0018]. En fait, la divulgation du document (3) ne permet pas de calculer l'activité initiale du catalyseur utilisé dans le procédé.

Selon le requérant, le rapport P et l'activité initiale du catalyseur seraient définis arbitrairement et donc ne devraient pas être pris en compte pour l'analyse de la nouveauté. Cependant, la Chambre considère que le rapport P et l'activité initiale du catalyseur représentent des caractéristiques techniques qui doivent être prises en compte pour l'évaluation de la nouveauté du procédé revendiqué. En outre, la Chambre

est d'avis que l'activité initiale du catalyseur n'est pas défini de façon arbitraire (voir point 4 ci-dessous). Cet argument du requérant doit donc être écarté.

La Chambre arrive donc à la conclusion que l'objet des revendications du brevet tel que délivré est nouveau par rapport aux documents (2) et (3).

4. *Activité inventive*

4.1 *Art antérieur le plus proche*

En accord avec les parties, la Chambre considère que l'état de la technique le plus proche de l'invention est représenté par le document (3). Ce document divulgue un procédé continu d'hydrogénation de l'adiponitrile en 6-aminocapronitrile en présence d'un catalyseur nickel de Raney et/ou cobalt de Raney dans lequel le catalyseur est séparé et du catalyseur frais ou régénéré et recyclé est ajouté dans le réacteur d'hydrogénation à piston.

4.2 *Problème technique*

L'intimé a défini le problème à résoudre comme étant la mise à disposition d'un procédé continu amélioré dans lequel l'amine formée contient moins d'impureté.

4.3 *Solution proposée*

La solution proposée par le brevet litigieux est le procédé de la revendication 1, caractérisée en ce que les débits d'alimentation en composés nitriles et/ou en catalyseur dans le réacteur piston sont contrôlés pour maintenir un rapport P entre le nombre de mole de

composés nitriles alimentés par unité de temps et le débit massique de catalyseur dans le réacteur piston, compris entre 0,02 et 0.15 mole de composés nitriles par kg de catalyseur pour un catalyseur présentant une activité initiale comprise entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur/s.

L'intimé déclare que le fait d'opérer le procédé avec un catalyseur ayant une activité initiale dans la gamme revendiquée provoque une diminution d'impuretés, lorsque le facteur P se trouve dans la gamme revendiquée. L'intimé n'a pas fait valoir que le choix d'une valeur du facteur P particulière contribuait à la minimisation des impuretés dans le procédé. La Chambre observe d'autre part que l'essai sur lequel s'appuie l'intimé pour mettre en évidence la minimisation des impuretés compare des procédés ayant les mêmes facteurs P et, par conséquent, ne peut pas montrer que le choix de certaines valeurs du facteur P contribue à la minimisation des impuretés. Dans ces circonstances, la caractéristique selon laquelle le rapport P est maintenu constant entre 0,02 et 0,15 mole de composés nitrile par kg de catalyseur ne peut être pris en compte dans l'évaluation de l'activité inventive selon l'approche problème/solution, lorsque le problème technique concerne la minimisation des impuretés (voir T 22/81, OJ EPO 1983, 226, points 5.1 et 7 des motifs).

La solution au problème technique de la minimisation des impuretés est donc caractérisée en ce que la valeur d'activité initiale du catalyseur est maintenue entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur(s).

4.4 Succès

4.4.1 Pour montrer que le problème de la diminution des impuretés est résolu, l'intimé se réfère aux exemples 1 et 2 du brevet tel que délivré, dans lesquels l'adiponitrile a été hydrogéné de façon continue en hexaméthylène diamine à une température de 82°C et une pression de 23 bar à l'aide de nickel de Raney. La concentration du catalyseur et le débit de l'adiponitrile sont réglés de façon à obtenir un facteur P comparable compris entre 0.041 et 0.055 mole d'ADN/kg de catalyseur.

Dans le procédé de l'exemple 1, lorsque le catalyseur présente une activité initiale de $26 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur, l'hexaméthylène diamine produite contient 1900 ppm de diaminocyclohexane (DCH), alors que l'exemple 2 (comparatif) montre que lorsque l'activité initiale du catalyseur est de $42 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur, l'hexaméthylène diamine contient 3500 ppm de DCH.

D'autre part, l'hexaméthylène diamine produite par le procédé de l'exemple 1 selon l'invention contient aussi moins d'impuretés UV.

Cette comparaison montre donc que la formation d'impureté dans un procédé continu d'hydrogénation de l'adiponitrile en hexaméthylène diamine est influencée par l'activité initiale du catalyseur, à savoir une diminution de l'activité initiale du catalyseur favorise la production d'hexaméthylène diamine de plus grande pureté.

4.4.2 Selon le requérant, cette comparaison n'était pas pertinente car dans le procédé de l'exemple comparatif 2 la nature du catalyseur n'était pas indiqué.

Cependant, s'agissant d'une comparaison entre deux procédés, en absence d'une indication du contraire, il est manifeste que le même type de catalyseur est utilisé dans les deux procédés, à savoir le nickel de Raney, la seule différence entre les catalyseurs se rapportant à leur activité initiale comme indiquée dans les exemples. L'intimé a confirmé ce fait lors de la procédure orale devant la Chambre.

Cet argument du requérant doit donc être rejeté.

- 4.4.3 Selon le requérant, la diminution des impuretés produites dans le procédé de l'exemple 1 par rapport au procédé de l'exemple comparatif 2 n'était pas démontrée, car l'endroit où les impuretés étaient mesurées, ainsi que la quantité d'hexaméthylène diamine produite, n'étaient pas indiqués dans les exemples.

Cependant cet argument n'est pas pertinent, puisque le problème technique réside dans la diminution de la proportion d'impuretés dans l'hexaméthylène diamine produite, ce qui est donc indépendant de la quantité d'hexaméthylène diamine produite et du lieu de mesure. Cette argument du requérant doit aussi être écarté.

- 4.4.4 Selon le requérant, le tableau 4 de la page 234 du document (6) divulguait que l'hexaméthylène brut obtenu dans un procédé d'hydrogénation catalytique de l'adiponitrile comprenait généralement entre 0,02 et 0,2% en poids d'aminocyclohexane. Or l'hexaméthylène obtenu par le procédé selon l'exemple 1 du brevet litigieux contenait 1900 ppm de d'aminocyclohexane, soit 0.19% en poids, ce qui se situait à l'extrémité supérieure de la plage du d'aminocyclohexane présent dans l'hexaméthylènediamine obtenue par les procédés de l'état de la technique. Le problème de la diminution du

diaminocyclohexane dans hexaméthylène diamine n'était donc pas résolu par le procédé du brevet litigieux.

Le document (6) est un extrait d'une encyclopédie qui reflète les connaissances générales de l'homme du métier en ce qui concerne l'hexaméthylène diamine. Les paramètres des procédés considérés dans le document (6) qui ont conduit à l'obtention d'une teneur en diaminocyclohexane dans l'hexaméthylènediamine dans une plage de 0,002 à 02% en poids ne sont pas décrits. Or de nombreux paramètres dans un procédé d'hydrogénation catalytiques de l'adiponitrile influencent la teneur du diaminocyclohexane dans l'hexaméthylènediamine produite. La comparaison des procédés des exemples 1 et 2 du brevet tel que délivré montre de façon convaincante que la diminution du diaminocyclohexane dans l'hexaméthylène diamine produite par l'hydrogénation catalytique de l'adiponitrile est liée à l'activité initiale du catalyseur. L'intimé a donc rendu crédible que la solution revendiquée permettait une diminution de la teneur en diaminocyclohexane, les autres paramètres du procédé restant constants. Or seule cette amélioration relative qui trouve sa source dans l'élément distinguant le procédé revendiquée de celui de l'état de la technique le plus proche de l'invention est requise dans le cadre de l'approche problème-solution comme preuve de l'amélioration alléguée. Nul n'est besoin dans ce contexte d'une amélioration absolue, i.e. d'un "progrès technique", qui exigerait que le procédé revendiqué produise une hexaméthylènediamine ayant une teneur plus faible en diaminocyclohexane que tous les procédés de l'état de la technique.

4.4.5 Selon le requérant, l'effet démontré dans le brevet avec un catalyseur à base de nickel de Raney n'est pas

extrapolable à tous les catalyseurs envisagés par la revendication 1.

Le catalyseur défini dans la revendication 1 du brevet tel que délivré est un catalyseur à base de métal de Raney. Dans les procédés des essais comparatifs le nickel de Raney, qui est un représentant typique de cette classe de catalyseur a été utilisé. A priori, il n'y a aucune raison technique permettant de conclure que l'effet montré avec un catalyseur à base de nickel de Raney ne s'étende pas aux catalyseurs à base d'un autre métal de Raney, en particulier au cobalt de Raney qui est divulgué dans le document (3) comme un catalyseur équivalent au nickel de Raney dans la réaction d'hydrogénation de l'adiponitrile (voir colonne 5, lignes 6 à 19). Faute d'être supportée par des faits tangibles, l'affirmation du requérant selon laquelle l'effet montré lorsque l'hydrogénation est effectuée avec un catalyseur à base de nickel de Raney ne s'applique pas aux catalyseurs à base d'un autre métal de Raney ne peut être retenue.

- 4.4.6 Selon le requérant, la diminution de la formation d'impuretés en réduisant l'activité du catalyseur a été montré dans le contexte spécifique de l'hydrogénation de l'adiponitrile en hexaméthylènediamine. Cet effet portant sur la présence de produits secondaires ne peut pas être extrapolé à l'hydrogénation de tous les composés comprenant au moins une fonction nitrile.

Le brevet litigieux ne contient qu'un seul exemple d'une hydrogénation d'un composé comprenant au moins une fonction nitrile, à savoir l'adiponitrile en hexaméthylène diamine. Les impuretés formées sont d'une part, le DCH, et, d'autre part, des composés non identifiés absorbant dans les UV.

La formation de produits secondaires dans une réaction d'hydrogénation est spécifique aux produits de départ. Ainsi, la formation de DCH est spécifique à l'hydrogénation de l'adiponitrile qui contient deux fonctions nitrile espacées par une chaîne hydrocarboné de 6 atomes de carbone, qui a donc la faculté de former des produit secondaires produites par une cyclisation, par exemple la DCH. Il est donc évident que pour l'hydrogénation de la plupart des composés comprenant au moins une fonctionnalité nitrile, les produits secondaires formés lors de l'hydrogénation de l'adiponitrile ne se forment pas.

4.4.7 Etant donné que de toute évidence il n'est pas plausible que la diminution de la formation de produits secondaires lors de l'hydrogénation de l'adiponitrile montrée dans les exemples du brevet litigieux s'applique aussi à l'hydrogénation de l'ensemble des composés comprenant au moins une fonctionnalité nitrile, et que l'intimé, lors de la procédure orale devant la Chambre, n'a pas été en mesure de citer des impuretés susceptibles de se former lors de l'hydrogénation d'un composé ne comprenant par exemple qu'une seule fonction nitrile, l'acétonitrile, la Chambre doit conclure que le problème technique de la diminution des impuretés n'est pas résolu pour l'ensemble des procédés de la revendication 1 de la requête principale.

4.5 *Reformulation du problème technique*

Le problème technique doit donc être reformulé en la mise à disposition d'un procédé d'hydrogénation alternatif.

4.6 *Solution*

La solution proposée par le brevet litigieux est le procédé de la revendication 1, caractérisée en ce que le rapport P est maintenu constant entre 0,02 et 0,15 mole de composés nitrile par kg de catalyseur et en ce que la valeur d'activité initiale du catalyseur est maintenue entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur(s).

4.7 *Evidence*

Le facteur P et l'activité initiale du catalyseur sont des paramètres d'un procédé d'hydrogénation qui peuvent être ajustés par l'homme du métier avec l'expertise dans le domaine. Le document (3) ne contient aucune restriction sur la valeur de ces paramètres. L'homme du métier en faisant des opérations de routine déterminera ces paramètres de manière à ce que l'hydrogénation puisse être exécutée avec une conversion suffisante dans un temps convenable, et arrivera ainsi à une valeur P et une activité initiale du catalyseur selon la revendication 1.

Il arriverait ainsi à l'objet de la revendication 1 du brevet tel que délivré sans faire preuve d'activité inventive.

Selon l'intimé, le choix de l'activité initiale du catalyseur utilisé dans le procédé dans une gamme de valeurs très étroite n'était pas évident.

Cependant, aussi étroite que cette gamme de valeurs puisse être, elle reste arbitraire puisque aucun effet n'est lié à ce choix de l'activité initiale pour les procédés objet la revendication 1 de la requête

principale, le problème technique étant réduit en la mise à disposition d'un procédé alternatif. Cet argument de l'intimé doit être écarté.

En conséquence, la requête principale doit être rejetée pour défaut d'activité inventive (Article 56 CBE).

Requête subsidiaire 1

5. Admissibilité

Le requérant a demandé que les requêtes subsidiaires 1 à 3 ne soient pas admises dans la procédure parce qu'elles n'étaient pas convergentes. Cependant, cet argument ne peut s'appliquer à la première requête subsidiaire, c'est-à-dire à la requête subsidiaire 1.

6. Modifications

La revendication 1 été limité à un procédé de préparation de l'hexaméthylène diamine à partir de l'adiponitrile, basé sur la revendication 4 de la demande telle que déposée et du brevet tel que délivré.

En conséquence, la revendication 1 de la requête subsidiaire 1 satisfait aux exigences de l'Article 123(2) et (3) CBE.

7. Activité inventive

7.1 Art antérieur le plus proche

L'état de la technique le plus proche de l'invention reste le document (3) qui divulgue un procédé continu de préparation de l'hexaméthylène diamine par

hydrogénation de l'adiponitrile en présence de nickel de Raney.

7.2 *Problème technique*

L'intimé a défini le problème à résoudre comme étant la mise à disposition d'un procédé continu amélioré dans lequel l'hexaméthylène diamine formée contient moins d'impuretés.

7.3 *Solution*

La solution proposée par le brevet litigieux au problème technique de la minimisation des impuretés est donc caractérisée en ce que la valeur d'activité initiale du catalyseur est maintenue entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H₂/g de catalyseur(s).

7.4 *Succès*

Comme le procédé de la revendication 1 a été limité à un procédé de préparation de l'hexaméthylène diamine à partir de l'adiponitrile, la Chambre est satisfaite que le problème de la diminution des impuretés dans l'hexaméthylène diamine est résolu par le procédé de la revendication 1 de la requête subsidiaire 1 (voir point 4.4 ci-dessus).

7.5 *Evidence*

Il reste donc à déterminer si la solution proposée au problème de diminution des impuretés est évidente à la lumière de l'état de la technique.

Aucun des documents cités par le requérant ne suggère que la teneur en diaminocyclohexane dans

l'hexaméthylène diamine produite par l'hydrogénation catalytique de l'adiponitrile puisse être réduite en opérant le procédé avec un catalyseur ayant une activité initiale entre $15 \cdot 10^{-5}$ et $35 \cdot 10^{-5}$ mole de H_2/g de catalyseur(s).

L'objet de la revendication 1 de la requête subsidiaire 1 ne découle donc pas de manière évidente de l'état de la technique.

Selon requérant, il était notoire que, plus l'activité du catalyseur augmentait, plus la sélectivité diminuait et donc plus il se formait de sous-produits. Par conséquent, la relation entre l'activité initiale du catalyseur et la formation de sous-produits, telle que démontrée dans l'exemple 1 et l'exemple comparatif 2, c'est-à-dire que la diminution de l'activité du catalyseur dans l'exemple 1 du brevet litigieux diminue la formation accrue de sous-produits était prévisible à la lumière des connaissances de l'homme du métier.

Cependant, le requérant n'a pas fourni de documents étayant les connaissances de l'homme du métier et établissant une relation entre la sélectivité du catalyseur et la formation de sous-produits. Cette allégation du requérant quant à la prévisibilité de la formation de diaminocyclohexane dans l'hexaméthylènediamine en fonction de l'activité initiale doit donc être écartée pour manque de fondement.

La Chambre arrive donc à la conclusion que l'objet de la revendication 1 de la requête subsidiaire 1 et, pour les mêmes raisons, celui des revendications dépendantes 2 à 13 impliquent une activité inventive (article 56 CBE).

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit

1. La décision contestée est annulée.
2. L'affaire est renvoyée à la division d'opposition afin de maintenir le brevet sur la base des revendications suivantes et une description à adapter :

Revendications :

N° : 1 à 13 de la requête subsidiaire 1 déposée avec la lettre datée du 6 mai 2019.

La Greffière :

Le Président :



C. Rodríguez Rodríguez

P. Gryczka

Décision authentifiée électroniquement