

Publication au Journal Officiel ~~Oui~~ / Non

N° de recours : T 781/90 - 3.3.2

N° de la demande : 85 400 047.8

N° de la publication : 0 152 314

Titre de l'invention : Procédé de fabrication de catalyseurs contenant du cuivre, du zinc et de l'aluminium utilisables pour la production de méthanol à partir de gaz de synthèse.

Classement : B01J 23/80

D E C I S I O N

du 1 avril 1992

Demandeur : Institut Français du Pétrole

Opposant : Süd-Chemie AG

Référence : Catalyseurs homogènes/IFP

CBE : Art. 54 et 56

Mot clé : "Nouveauté et activité inventive d'un produit défini par des caractéristiques structurelles et par son procédé de fabrication (oui)"

Sommaire



N° du recours : T 781/90 - 3.3.2

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.2
du 1 avril 1992

Requérante :
(Opposant)

SÜD-CHEMIE AG
Lenbachplatz 6
W - 8000 München 2
Allemagne

Mandataire :

Patentanwälte
Dipl. Ing. R. Splanemann
Dr. B. Reitzner
Dipl. Ing. K. Baronetzky
Tal 13
W - 8000 München 2
Allemagne

Adversaire :
(Titulaire du brevet)

INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE
4, Avenue de Bois Préau
F - 92502 Rueil-Malmaison
France

Mandataire :

Décision attaquée : Décision de la division d'opposition de l'Office européen des brevets du 03.08.90 par laquelle l'opposition formée à l'égard du brevet n° 0 152 314 a été rejetée conformément aux dispositions de l'article 102(2) CBE.

Composition de la Chambre :

Président : P.A.M. Lançon
Membres : M.M. Eberhard
R.L.J. Schulte

Exposé des faits et conclusions

- I. La demande de brevet européen 85 400 047.8 a donné lieu à la délivrance du brevet n° 152 314 sur la base de treize revendications.
- II. La requérante (opposante) a formé opposition au brevet et requis sa révocation pour manque d'activité inventive. Elle a aussi soulevé des objections sur la base des articles 83 et 84 à l'encontre de la revendication 1. Parmi les documents cités à l'appui des motifs d'opposition, seuls les documents suivants ont été pris en considération par la requérante lors de la procédure orale devant la Chambre :

- (1) US-A-4 111 847
- (6) US-A-3 388 972
- (9) Ullmans Enzyklopädie der Techn. Chemie, vol. 13, 1977, page 562
- (10) Gmelin, 1934, Al (B) 31, page 35
- (11) Römpps Chemie-Lexikon PHA 3103, 1985.

- III. La Division d'opposition a rejeté l'opposition. Dans sa décision elle a constaté que les conditions relatives à la suffisance de description étaient remplies. Elle a considéré que le document (6) représentait l'état de la technique le plus proche et souligné que le séchage par atomisation pendant un temps très court selon l'étape h) permettait d'obtenir des catalyseurs ayant des propriétés améliorées, en particulier une activité élevée, par rapport aux catalyseurs obtenus par séchage traditionnel tels que ceux de (6). Cette amélioration ressortait des exemples 1 et 2. Selon la Division d'opposition, le séchage par atomisation était certes connu en soi du document (9), cependant aucun des documents cités relatifs à la préparation de catalyseurs ne suggérait d'utiliser un séchage de ce type.

IV. La requérante a formé un recours contre cette décision. Une procédure orale a eu lieu le 1 avril 1992. Au cours de cette procédure, l'intimée (titulaire du brevet) a déposé, à titre de requête principale, des revendications modifiées suite aux objections de la Chambre notamment à l'encontre de la revendication 9 du brevet délivré. Le libellé de la revendication 1 est le suivant :

"Procédé de préparation d'un catalyseur de composition essentiellement homogène contenant au moins trois éléments essentiels : le cuivre, le zinc et l'aluminium, caractérisé en ce qu'il comprend les étapes suivantes :

- a) mise en contact d'une solution d'au moins un composé de métal alcalin choisi dans le groupe formé par les hydrogéo-carbonates, les carbonates et les hydroxydes avec une solution essentiellement homogène, contenant sous forme de sels et/ou de complexes solubles au moins l'ensemble des métaux cuivre, zinc et aluminium, ladite mise en contact ayant lieu à un pH régulé compris entre 6,3 et 7,3 environ, de manière à former un précipité homogène amorphe présentant un diagramme plat en diffraction X d'au moins les métaux cuivre, zinc et aluminium, le temps de résidence dudit précipité dans les eaux mères étant de 0,1 à 30 minutes,
- b) lavage à l'eau du précipité obtenu à l'étape (a), jusqu'à réduire sa teneur en métaux alcalins à une valeur comprise entre 0,1 et 0,3 % environ en poids par rapport aux métaux exprimés en poids,
- c) séchage puis calcination du précipité lavé obtenu à l'étape (b), de manière à le convertir en un mélange d'oxydes,
- d) lorsque le mélange d'oxydes obtenu à l'étape (c) a une granulométrie supérieure à 0,5 millimètre, broyage dudit mélange d'oxydes à une granulométrie inférieure à 0,5 millimètre environ,

- e) mise en suspension aqueuse du mélange d'oxydes de granulométrie inférieure à 0,5 millimètre environ,
- f) lavage de la suspension d'oxydes obtenue à l'étape (e), par solution aqueuse d'un acide, ladite solution ayant un pH inférieur à 6,7 environ, de manière à réduire sa teneur en métaux alcalins à une valeur inférieure à environ 0,05 % en poids par rapport à l'ensemble des métaux,
- g) séparation du mélange d'oxydes désalcalinisé obtenu à l'étape (f) des eaux de lavages,
- h) séchage par atomisation du mélange d'oxydes désalcalinisé obtenu à l'étape (g) à une température de 60 à 150°C environ avec un temps de résidence compris entre 1 et 10 secondes, de manière à obtenir un produit ayant une teneur en oxydes d'environ 60 % à environ 80 % en poids,
- i) activation thermique du mélange d'oxydes séché, essentiellement homogène, obtenu à l'étape (h)."

La revendication 9 est formulée comme suit :

"Catalyseur de composition essentiellement homogène contenant au moins trois éléments essentiels : le cuivre, le zinc et l'aluminium, obtenu selon l'une des revendications 1 à 8, l'homogénéité étant telle que les variations de rapports atomiques Cu/Al et Cu/Zn sont inférieures à 15 % environ par rapport à la valeur moyenne desdits rapports à l'échelle de 50 Angströms (5nm), la surface spécifique du catalyseur étant de 50 à 150 m²/g environ."

La revendication 11 concerne l'utilisation d'un tel catalyseur.

- V. Les arguments présentés par la requérante par écrit ou lors de la procédure orale peuvent être résumés comme suit :
Les modifications de la revendication 11 ne satisfont pas

aux dispositions de l'article 123(3). De plus, la revendication 1 devrait être limitée dans l'étape f) aux valeurs de pH qui n'entraînent pas une redissolution partielle et sélective des constituants du précipité et permettent donc d'obtenir un catalyseur de composition homogène. Une telle homogénéité n'est vraisemblablement pas obtenue lorsqu'une solution à pH=2 est utilisée pour laver un produit contenant 0,1 % de sodium.

Seules les mesures des étapes f) et h) contribuent à résoudre le problème d'amélioration de l'homogénéité du catalyseur et de diminution maximale de la teneur en métaux alcalins. Les exemples 1 à 4 et 15-18 du brevet montrent que l'activité du catalyseur dépend de façon prépondérante de la teneur en sodium. Quant au séchage selon l'exemple 2, il n'est pas réaliste. Il résulte des essais comparatifs du 16 août 1991 qu'un séchage classique dans des conditions plus réalistes ne provoque pas de grossissement des cristallites de CuO par rapport au séchage par atomisation et que l'activité reste la même. De plus, un séchage par atomisation de 60 s. selon l'exemple 16 paraît difficilement réalisable compte tenu de la hauteur de séchoir qu'il nécessiterait. En outre, les mesures selon les étapes f) et h) ne représentent qu'une simple juxtaposition de caractéristiques n'ayant pas d'interaction.

L'utilisation dans le document (1) d'une solution de bicarbonate d'ammonium pour la mise en suspension du mélange d'oxydes calciné équivaut à l'emploi d'une solution aqueuse d'acide selon l'étape f) puisque les ions Na^+ peuvent être mieux éliminés par échange d'ions avec des ions NH_4^+ ou H^+ qu'avec de l'eau pure. De plus, (1) enseigne que l'activité du catalyseur est augmentée par diminution de la teneur en métal alcalin et mieux encore par absence de composé alcalin lors de la précipitation. Le lavage selon l'étape f) est de toute façon implicitement

anticipé par le lavage à l'eau selon le document (6) puisque l'eau pure ayant séjourné à l'air présente un pH de 5,5 à 5,8 d'après le document (11). Par ailleurs, le document (10) divulgue que la teneur en alcalis de précurseurs de catalyseur contenant de l'alumine hydratée peut être diminuée de façon plus effective avec des acides dilués qu'avec l'eau pure.

Le fait que le type de séchage du précurseur de catalyseur ne soit pas mentionné dans les documents (1) et (6) est vraisemblablement dû à ce que les catalyseurs ont été préparés à l'échelle laboratoire. Pour transposer à l'échelle industrielle, l'homme du métier chercherait une méthode permettant un séchage rapide et ménagé du précurseur. Le séchage par atomisation selon (9) représente une telle méthode. Le document 9a "Catalyst Technology" I.P. Mukhlyonov, 1976, pages 248-254" relatif à la production de catalyseurs enseigne que le séchage par atomisation est un séchage rapide et ménagé particulièrement approprié pour des suspensions et conduisant à des produits homogènes. Les avantages de ce type de séchage pour les précurseurs de catalyseurs pulvérulents sont si nombreux que l'homme du métier l'aurait envisagé pour mettre en oeuvre le procédé selon (1) ou (6) à l'échelle industrielle.

En ce qui concerne le catalyseur selon la revendication 9, la caractéristique relative à l'homogénéité de composition n'est pas nouvelle car une telle homogénéité est aussi obtenue en utilisant les procédés de préparation décrits dans le document (1) et dans le document (6). En effet, les conditions de précipitation employées dans l'exemple 4B de (1) ou l'exemple 3 de (6) sont pratiquement identiques à celles du brevet puisqu'il est bien connu qu'une augmentation de température de 10°C raccourcit le temps de réaction d'environ la moitié ; par conséquent, ces conditions devraient aussi conduire à l'obtention d'un

précipité amorphe, homogène. Dans le cas de la précipitation avec le carbonate d'ammonium selon l'exemple 4A de (1), le pH, la température et le temps de résidence lors de la précipitation sont aussi comparables à celles du brevet. A un pH de 6,9, il n'y a ni formation de complexes aminés du cuivre, ni dissolution de composés du Zn ou du Cu risquant d'affecter négativement l'homogénéité du catalyseur. Les étapes ultérieures de remise en suspension, lavage et séchage (étapes e) à h) ne sont pas nécessaires puisque le sodium est absent. Par conséquent, le catalyseur final est aussi homogène.

VI. L'intimée a contesté cette argumentation et présenté des essais comparatifs complémentaires (lettre du 12 février 1992). Elle a notamment fait valoir que pour obtenir un catalyseur ayant l'homogénéité revendiquée il était essentiel de former un précipité amorphe et homogène dans l'étape de coprécipitation a) et de préserver cette homogénéité dans toutes les étapes suivantes. Par conséquent, la combinaison dans l'ordre indiqué des neuf étapes du procédé était nécessaire pour résoudre le problème de l'obtention d'un catalyseur de composition essentiellement homogène. Elle a aussi souligné que les documents (1) et (6) ne contenaient aucune indication au sujet de l'homogénéité ou du caractère amorphe du précipité. D'après l'intimée, les conditions de coprécipitation utilisées dans (1) et (6) différeraient de celles de l'étape a) dans laquelle la coprécipitation est effectuée à un pH constant fixe avec un temps de résidence d'au maximum 30 minutes et par conséquent il ne pouvait être conclu au caractère homogène du précipité. L'intimée a en outre avancé que le lavage acide de l'étape f) permettait d'éliminer le sodium tout en préservant l'homogénéité et que le séchage par atomisation selon l'étape h) évitait tout grossissement des cristallites nuisant à l'homogénéité du catalyseur, contrairement au séchage classique selon (1) ou (6). Elle a fait valoir que

les documents (9) et (9a) ne suggéraient pas d'utiliser un séchage par atomisation dans le cas où le produit à sécher devait conserver son homogénéité.

VII. La requérante a requis l'annulation de la décision de la Division d'opposition et la révocation du brevet. L'intimée a sollicité le rejet du recours et le maintien du brevet sous forme modifiée sur la base des revendications 1 à 13 déposées au cours de la procédure orale.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.
2. Les revendications modifiées satisfont aux dispositions de l'article 123(2) et (3).

La revendication 1 diffère de celle du brevet délivré et de la demande telle que déposée uniquement par l'introduction du mot "régulé" dans l'étape a) de coprécipitation. Il découle directement de la description initiale que la mise en contact des deux solutions a lieu à un "pH régulé compris entre 6,3 et 7,3 environ" : voir page 8, lignes 29-31 et page 16, lignes 27-28 (correspondant à page 4, lignes 35-36 et page 7, ligne 2 du brevet). La revendication 9 est supportée par les revendications 10 et 1 de la demande initiale, qui sont identiques à celles du brevet délivré. Les caractéristiques de la revendication 10, qui est maintenant rédigée sous forme de revendication dépendante rattachée à la revendication 9, trouvent leur support dans la revendication 9 initiale. La revendication 11 d'utilisation du catalyseur est supportée par la revendication 11 de la demande telle que déposée ou du brevet. De plus, les modifications effectuées n'étendent manifestement pas l'étendue de la protection du brevet délivré. Le

remplacement dans la revendication 11 du brevet délivré de l'expression "utilisation d'un catalyseur obtenu suivant l'une des revendications 1 à 10" par l'expression "utilisation d'un catalyseur selon l'une des revendications 9 et 10" ne résulte pas en une extension de la protection puisque la revendication 9 à laquelle elle se réfère concerne un catalyseur obtenu selon l'une des revendications 1 à 8.

3. D'après la requérante, les conditions des articles 83 et 84 ne sont pas remplies car la revendication ne précise pas de limite inférieure de pH dans l'étape f) bien que des valeurs très basses de pH ne puissent pas conduire à un catalyseur homogène tel que revendiqué.

Non seulement les revendications mais aussi la description sont à prendre en considération pour déterminer si l'invention est suffisamment décrite pour permettre à l'homme du métier de l'exécuter et donc, dans le cas présent, de fabriquer un catalyseur homogène. Dans les exemples la solution de lavage utilisée dans l'étape f) a un pH de 4,5 et le catalyseur obtenu présente une bonne homogénéité. La requérante n'a pas contesté la reproductibilité de ces exemples. La Chambre considère donc qu'il est satisfait à la condition de suffisance de description selon l'article 83.

Il est indiqué dans le brevet (page 5, lignes 10-14) que le pH de la solution aqueuse d'acide est avantageusement compris entre 2 et 5 environ et qu'au cours du lavage le pH augmente et peut atteindre des valeurs supérieures à environ 7 par suite de la désalcalinisation du solide. Les essais complémentaires soumis par l'intimée (lettre du 12 février 1992) confirment la possibilité d'obtenir un catalyseur homogène avec une solution de lavage à pH=2 et illustrent la remontée très rapide du pH à des valeurs auxquelles il ne se produit pratiquement pas de dissolution des oxydes. Il apparaît vraisemblable au vu de la courbe correspondante qu'un catalyseur ayant une homogénéité

encore satisfaisante puisse être obtenu lorsqu'une solution de lavage à pH inférieur à 2 est utilisée pour désalcaliniser un produit renfermant la teneur maximale en Na. Etant donné qu'il fait partie des connaissances générales qu'une dissolution partielle et sélective des oxydes de Zn et de Cu risque de se produire à pH très bas, l'homme du métier associerait l'emploi des solutions de lavage à pH égal ou inférieur à 2 à la désalcalinisation des produits contenant les plus hautes teneurs en Na et non à celle de produits contenant seulement 0,1 % de Na comme l'a envisagé la requérante. Dans ces circonstances la limitation de la revendication 1 à une valeur minimale de pH égale à 2 ne paraît pas justifiée.

4. Le brevet concerne un procédé de fabrication de catalyseurs contenant les éléments cuivre, zinc et aluminium, utilisables en particulier pour la production du méthanol à partir de gaz de synthèse ainsi que les catalyseurs obtenus selon ce procédé. Le document (1), qui décrit de tels catalyseurs ainsi que deux procédés pour leur fabrication est considéré comme représentant l'état de la technique le plus proche.

Le catalyseur selon l'exemple 4B, dont le procédé de préparation est manifestement plus proche de celui du brevet que le procédé décrit dans l'exemple 4A, est préparé par addition d'une solution de carbonate de sodium à une solution contenant les nitrates de Cu, de Zn et d'Al à une température de 50°C jusqu'à ce que le pH atteigne la valeur 6,9, lavage du précipité après mûrissement d'une heure, séchage et calcination du précipité lavé, remise en suspension de la poudre calcinée dans une solution de bicarbonate d'ammonium et lavage par décantation avec une telle solution de façon à réduire la teneur en ions sodium à une valeur inférieure à 0,05 %, filtration du mélange d'oxydes lavé suivie par un séchage (voir col. 5, ligne 47 à col. 6, ligne 18, exemple 4B).

4.1 Partant de cet état de la technique, le problème technique à résoudre était de fournir un catalyseur ayant de meilleures performances en particulier une meilleure activité pour la production de méthanol à partir de gaz de synthèse.

Conformément à la revendication 9, la solution proposée consiste en un catalyseur de composition essentiellement homogène ayant une homogénéité telle que les variations des rapports atomiques Cu/Al et Cu/Zn sont inférieures à 15 % environ par rapport à la valeur moyenne desdits rapports à l'échelle 50 Angströms, et présentant une surface spécifique de 50 à 150 m²/g environ, ce catalyseur étant obtenu par le procédé de préparation selon la revendication 1, qui comprend la succession des étapes a) à i) telles que définies dans cette revendication.

4.2 Il ressort de la comparaison de l'exemple 1 (catalyseur selon l'invention) avec l'exemple comparatif 2 que si le séchage du mélange d'oxydes désalcaliné n'est pas effectué conformément à l'étape h) de la revendication 1, toutes les autres conditions de préparation étant identiques, le catalyseur obtenu ne présente pas l'homogénéité de composition définie dans la revendication 9 et a une activité nettement inférieure à celle du catalyseur selon l'exemple 1 dans la synthèse du méthanol à une température de 240°C, ceci à des teneurs en sodium semblables (voir aussi les essais comparatifs du 12 février 1992). La comparaison de l'exemple 1 avec l'exemple comparatif 17 montre de plus qu'une augmentation du temps de résidence dans l'étape de coprécipitation conduit à un catalyseur non homogène présentant une activité plus faible que le catalyseur selon l'invention, à teneur identique en sodium. Quant aux exemples comparatifs 3 et 15 ils mettent en évidence la nécessité d'effectuer le lavage du mélange d'oxydes désalcalinisé et le broyage suivant les étapes f) et d) en combinaison avec les autres étapes du procédé

revendiqué pour obtenir un catalyseur ayant à la fois une meilleure homogénéité et une teneur en sodium inférieure à 0,05 %, et par conséquent une meilleure activité. Bien qu'une comparaison directe avec les catalyseurs préparés selon les procédés décrits dans les exemples 4A et 4B du document (1) n'ait pas été fournie, les exemples comparatifs ont cependant été effectués avec des catalyseurs dont la préparation ne diffère chaque fois de celle du catalyseur revendiqué que par une seule des caractéristiques distinctives et par conséquent avec des catalyseurs dont la méthode de préparation est plus proche de celle du catalyseur revendiqué que de celles décrites dans (1). Cette comparaison montrant plus clairement les effets ou l'amélioration résultant des caractéristiques distinctives, la Chambre considère au vu de ces exemples comparatifs que le problème posé a été résolu de façon crédible par les caractéristiques définies dans les revendications 9 et 1 (voir dans ce contexte la décision T 35/85 du 16 décembre 1986).

- 4.3 Les affirmations de la requérante que les conditions de séchage selon l'exemple comparatif 2 ne seraient pas réalistes ont été contestées par l'intimée qui les considère comme parfaitement réalistes dans le cas d'un traitement industriel. D'après la requérante un séchage à 40°C pendant 16 heures provoquerait une croissance des cristallites d'hydroxycarbonates, ce qui expliquerait la perte d'activité du catalyseur de l'exemple comparatif 2 (cf. lettre du 16 août 1991). Ces arguments ne sont pas convaincants car, d'une part, dans l'exemple 1 du brevet le précurseur hydraté comprenant les métaux au moins en partie sous forme d'hydroxycarbonates a été séché pendant 16 heures à 40°C (étape c) et le catalyseur final présente cependant une excellente activité, et d'autre part, lors du séchage du produit désalcalinisé le produit ne se trouve plus sous forme d'hydroxycarbonates. Les exemples comparatifs présentés par la requérante n'indiquent ni les

conditions de préparation du catalyseur, ni la dimension des cristallites de CuO avant le séchage si bien qu'aucune conclusion ne peut en être tirée. De plus, la dimension des cristallites de CuO étant de 60 Å après le séchage, il apparaît que les catalyseurs A et B ne présentent pas l'homogénéité définie dans la revendication 9. Par conséquent, ces arguments ne peuvent mettre en doute que le problème posé a été effectivement résolu par les caractéristiques revendiquées. Quant à l'exemple comparatif 16, il n'a pas été pris en considération du fait qu'un temps de séchage de 60 secondes semble être inusuellement long pour un séchage par atomisation. Par conséquent, les arguments de la requérante à ce sujet ne remettent pas en cause la conclusion du point 4.2.

5. Aucun des documents cités ne décrit un catalyseur présentant l'homogénéité indiquée dans la revendication 9, tel qu'obtenu par un procédé comprenant les étapes a) à i) définies dans la revendication 1.
- 5.1 Lors de la procédure orale, la requérante a fait valoir que des catalyseurs possédant l'homogénéité revendiquée devait être obtenus dans les exemples 4A et 4B du document (1) et dans l'exemple 3 du document (6) étant donné notamment que les conditions de coprécipitation étaient identiques à celles mentionnées dans l'étape a) de la revendication 1 et que dans le cas de l'exemple 4A les étapes e) à h) n'étaient pas nécessaires.

Selon la Chambre, la comparaison des conditions de précipitation utilisées dans les exemples 4A et 4B de (1) avec celles de l'étape a) de la revendication 1 ne permet pas de conclure à l'identité des conditions de coprécipitation. En effet, dans ces exemples, le pH augmente progressivement jusqu'à la valeur 6,9 pendant les 90 minutes où la solution de carbonate d'ammonium ou de sodium est ajoutée dans la solution de nitrates à 50°C et

la suspension est ensuite mûrie pendant une heure à 50°C. Le temps de "résidence" (temps de précipitation et de mûrissement) est donc de 150 minutes à 50°C. Ces conditions ne sont pas identiques à celles de l'étape a) dans laquelle la mise en contact des deux solutions a lieu à un pH dont la valeur est constamment régulée à une valeur comprise entre 6,3 et 7,3 (à une température comprise entre 20 et 80°C, voir page 4, lignes 28-36) et le temps de résidence du précipité dans le volume réactionnel ne dépasse pas 30 minutes. La température de précipitation est certes maintenue entre 60 à 70°C dans les exemples du brevet au lieu de 50°C dans les exemples 4A et 4B, cependant le temps de résidence associé à cette température plus élevée est de l'ordre de 10 minutes (cf. page 6, ligne 65 et page 7, ligne 7). L'application aux exemples 4A et 4B de la règle de Van't Hoff relative à l'augmentation de la vitesse de réaction en fonction de la température conduirait encore à un temps de résidence dépassant la valeur maximale de 30 minutes indiquée dans la revendication 1. De plus, il n'a pas été prouvé que cette règle s'applique aussi au cas du mûrissement d'un précipité. Compte tenu d'une part de ces différences dans la méthode et les conditions de précipitation et, d'autre part, de l'exemple comparatif 17 montrant que le temps de résidence à une température donnée est critique pour l'obtention d'un précipité amorphe, la conclusion de la requérante au sujet du caractère amorphe et homogène du précipité formé dans les exemples 4A et 4B n'est pas convaincante en l'absence de preuves la supportant. Un précipité non homogène ne pouvant conduire après calcination et éventuellement désalcalinisation et séchage à un catalyseur de composition homogène au sens défini dans la revendication 9, la Chambre ne peut donc considérer que les catalyseurs des exemples 4A et 4B ont une homogénéité identique à celle des catalyseurs revendiqués.

5.2 Le catalyseur de l'exemple 3 du document (6) présente une surface spécifique de $102 \text{ m}^2/\text{g}$ à l'état réduit et sa teneur en sodium est de 0,045 %. Dans cet exemple, les conditions de précipitation diffèrent déjà de celles du brevet en ce que la solution contenant les composés de Zn et de Cu ne renferme pas de composé soluble d'Al. L'aluminate de Na se trouve dans la solution de carbonate de sodium. Un coprecipité d'alumine et de carbonates de Zn et de Cu est obtenu par addition progressive de la solution des nitrates de Zn et de Cu à 60°C dans la solution de carbonate de sodium elle aussi à 60°C , le temps d'addition étant compris entre 39 et 48 minutes (voir col. 6, lignes 49-52 et 65-69). Les conditions de pH pendant la précipitation ne sont pas précisées, la seule indication étant qu'après dilution et avant filtration le pH doit être compris entre 7 et 8. La précipitation n'étant pas effectuée suivant le processus indiqué dans l'étape a) de la revendication 1, il ne peut être conclu sans avoir reproduit l'exemple 3 et sans contrôle en diffraction X et au microscope électronique que le précipité séché est amorphe et homogène. Dans ces circonstances, étant donné que la requérante sur laquelle repose la charge de la preuve n'a fourni aucune preuve supportant son affirmation, la Chambre ne peut considérer que le précipité selon l'exemple 3 de (6) est homogène. De plus, même s'il était homogène, il serait encore nécessaire de préserver cette homogénéité lors des étapes ultérieures notamment lors du séchage suivant la désalcalinisation. Or, le document (6) ne divulgue pas le séchage dans les conditions de l'étape h), qui doit conduire à un produit ayant une teneur en oxydes d'environ 60 à 80 % en poids. Par conséquent, le catalyseur selon l'exemple 3 de (6) ne peut être considéré comme présentant la même homogénéité de composition que le catalyseur selon la revendication 9.

Il résulte de ce qui précède que le catalyseur objet de la revendication 9 est nouveau.

6. L'homme du métier confronté au problème d'améliorer l'activité des catalyseurs de synthèse du méthanol, préparés par coprécipitation avec un composé du sodium aurait automatiquement déduit du document (1) que la teneur en sodium du catalyseur doit être aussi faible que possible puisque ce document insiste sur la nécessité d'avoir une très faible teneur en Na pour obtenir une bonne activité en synthèse du méthanol. Bien que les documents cités ne contiennent aucune information soulignant l'importance de l'homogénéité de composition du catalyseur, il est cependant évident pour l'homme du métier qu'un catalyseur ayant à la fois une meilleure homogénéité de composition et une teneur très faible en sodium présenterait de meilleures performances dans la réaction de synthèse du méthanol. Toutefois, aucun des documents cités ne divulgue, ni ne suggère comment le procédé de fabrication selon l'exemple 4B du document (1) (ou selon le document (6)) devrait être modifié pour aboutir à un catalyseur ayant une meilleure homogénéité, c'est-à-dire l'homogénéité de composition définie dans la revendication 9, tout en maintenant la teneur en sodium à des valeurs relativement faibles.

6.1 En particulier les documents (1) et (6), dont les conditions de précipitation ont été analysées précédemment, ne contiennent aucune information susceptibles d'inciter l'homme du métier à effectuer la coprécipitation dans les conditions indiquées dans la revendication 1. Ces documents ne suggèrent pas non plus que lorsque la précipitation a eu lieu dans ces conditions le produit calciné doit avoir une granulométrie inférieure à 0,5 mm pour que l'étape de désalcalinisation puisse conduire à un mélange d'oxydes ayant la teneur en sodium désirée (<0,05 % en poids par rapport à l'ensemble des métaux). En ce qui concerne la désalcalinisation du mélange d'oxydes, le document (6) divulgue que la teneur en Na du catalyseur peut être abaissée à une valeur inférieure à 0,05 % par remise en

suspension du mélange calciné et lavage à l'eau. Le type d'eau utilisé n'étant pas précisé, il ne peut être conclu que son pH est inférieur à 6,7 (à 25°C), ceci même si le document (11) publié après la date de dépôt de la demande était pris en considération. La question de savoir si à la lumière de l'enseignement des documents (6) et (10) l'homme du métier aurait été incité à désalcaliniser le mélange d'oxydes par lavage avec une solution aqueuse très diluée d'un acide ayant un pH compris par exemple entre 6 et 6,7 peut rester ouverte car, même en considérant au profit de la requérante qu'un tel lavage est évident au moins dans ce domaine de pH, l'issue de la décision n'en serait pas changée.

- 6.2 Les documents (1) et (6) mentionnent le séchage du mélange d'oxydes désalcalinisé sans donner aucune précision sur les conditions de séchage. Quant aux documents (9) et (9a) ils confirment les connaissances générales de l'homme du métier, à savoir que le séchage par atomisation peut être utilisé pour le séchage de précurseurs de catalyseurs lorsque ceux-ci sont sous forme de poudre, de grains fins (document (9)), de suspensions ou de pâtes à basse viscosité (cf. (9a), page 249). Le document (9a) enseigne que le produit séché par atomisation est sous forme de particules sphériques homogènes d'une dimension allant jusqu'à 100 μm et que pour des particules de cette dimension le séchage ne dure que quelques secondes (voir page 249, dernière phrase et page 250, ligne 3). Il n'est toutefois pas question de l'homogénéité de composition à l'échelle 50 Å. D'après (9a) les gaz utilisés pour le séchage ont une température de plusieurs centaines à 1000°C et la température à la surface des particules ne dépasse pas 100-110°C lorsque le temps de résidence est correctement choisi. Ce document ne laisse pas entrevoir que ce type de séchage permettrait d'améliorer l'homogénéité des catalyseurs par rapport à un séchage usuel en étuve ventilée qui est plus économique sur le plan

énergétique. Dans ces circonstances, il ne peut être considéré que l'homme du métier aurait essayé le séchage par atomisation parce qu'il en escomptait une amélioration de l'homogénéité des catalyseurs (voir décision T 2/83, JO 1984, 265). La Chambre observe de plus que même s'il avait envisagé de tels essais, l'homme du métier aurait encore eu à déterminer les conditions du séchage pour arriver au produit revendiqué. Or, aucun des documents cités ne suggère que le séchage par atomisation doit être effectué dans des conditions telles que le produit séché ne contienne que 60 à 80 % en poids d'oxydes, comme requis dans l'étape h) de la revendication 1, pour obtenir après l'étape d'activation thermique un catalyseur présentant l'homogénéité améliorée définie dans la revendication 9.

- 6.3 Il résulte de ce qui précède que la production d'un catalyseur ayant à la fois une faible teneur en Na et une homogénéité telle que définie dans la revendication 9 ne découle pas de façon évidente des documents cités. Par conséquent, le catalyseur revendiqué et son procédé de fabrication selon la revendication 1 satisfont aux dispositions de l'article 56.
7. Les revendications dépendantes 2 à 8 et 10, qui concernent des modes de réalisation particuliers, bénéficient de la brevetabilité des revendications 1 et 9 et sont donc aussi acceptables. Du fait de la brevetabilité du catalyseur revendiqué, les revendications concernant les utilisations de ce produit sont acceptables.
8. La description du brevet n'avait pas été adaptée aux revendications du brevet délivré. Elle n'est pas en accord non plus avec les revendications modifiées remises lors de la procédure orale et il reste donc à l'adapter à celles-ci.

Dispositif

1. La décision de la Division d'opposition est annulée.
2. L'affaire est renvoyée à la Division d'opposition pour maintien du brevet sous forme modifiée sur la base des revendications 1 à 13 déposées au cours de la procédure orale et une description encore à adapter.

Le Greffier :

Le Président :

P. Martorana

P. Lançon