

**Code de distribution interne :**

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

**D E C I S I O N**  
**du 6 novembre 2002**

**N° du recours :** T 0305/99 - 3.2.2

**N° de la demande :** 91402801.4

**N° de la publication :** 0482992

**C.I.B. :** C21D 1/76

**Langue de la procédure :** FR

**Titre de l'invention :**

Procédé d'élaboration d'une atmosphère de traitement thermique

**Demandeur/Titulaire du brevet :**

L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION  
DES PROCEDES GEORGES CLAUDE

**Opposant :**

- 1) Messer Griesheim GmbH
- 2) Linde Aktiengesellschaft
- 3) Praxair, Inc.

**Référence :**

-

**Normes juridiques appliquées :**

CBE Art. 54, 56

**Mot-clé :**

"Activité inventive (non)"

**Décisions citées :**

-

**Exergue :**

-



N° du recours : T 0305/99 - 3.2.2

**D E C I S I O N**  
**de la Chambre de recours technique 3.2.2**  
**du 6 novembre 2002**

**Requérante :** L'AIR LIQUIDE, SOCIÉTÉ ANONYME POUR L'ÉTUDE ET  
(Titulaire du brevet) L'EXPLOITATION DES PROCÉDES GEORGES CLAUDE  
75, Quai d'Orsay  
F-75321 Paris Cédex 07 (FR)

**Mandataire :** Le Moenner, Gabriel  
L'AIR LIQUIDE, Société Anonyme  
pour l'étude et l'exploitation des procédés  
Georges Claude  
75, Quai d'Orsay  
F-75321 Paris Cédex 07 (FR)

**Intimées :** Messer Griesheim GmbH  
(Opposante 1) Patentabteilung, Lärchenstrasse, 139a  
D-60933 Frankfurt (DE)

**Mandataire :** LINDE AKTIENGESELLSCHAFT  
(Opposante 2) Zentrale Patentabteilung  
D-82049 Höllriegelskreuth (DE)

**Mandataire :** Praxair, Inc.  
(Opposante 3) 39 Old Ridgebury Road  
06810-5113 Danbury, Ct (US)

**Mandataire :** Schwan, Gerhard, Dipl.-Ing.  
Schwan Schwan Schorer  
Patentanwälte  
Bauerstrasse 22  
D-80796 München (DE)

**Décision attaquée :** Décision de la division d'opposition de l'Office  
européen des brevets signifiée par voie postale le  
17 février 1999 par laquelle le brevet européen  
n° 0 482 992 a été révoqué conformément aux  
dispositions de l'article 102(1) CBE.

**Composition de la Chambre :**

**Président :** W. D. Weiss  
**Membres :** M. G. Noel  
U. J. Tronser

## Exposé des faits et conclusions

- I. La requérante (titulaire du brevet) a formé un recours contre la décision de la Division d'opposition de révoquer le brevet européen n° 0 482 992.

Le brevet avait été contesté dans sa totalité par trois oppositions basées sur l'article 100(a) CBE (absence de nouveauté et d'activité inventive).

Selon les conclusions de la Division d'opposition, l'objet des revendications modifiées par la requérante était certes considéré comme nouveau, mais cependant dépourvu d'activité inventive vis-à-vis de l'état de la technique représenté par les documents :

E5 : V.B. Skakal'skii et al : "Commercial Nitrogen - The Basis for a Universal Controlled Atmosphere", Metal Science and Heat Treatment Vol. 20, N° 5/6, mai 1978, pages 377-381, Plenum Publishing Corp.

E13 : Nature, Vol. 344, 22 mars 1990, pages 319-321.

- II. Avec son mémoire de recours déposé le 15 mai 1999, la requérante a soumis deux nouveaux jeux de revendications selon une requête principale (huit revendications) et une requête auxiliaire (six revendications).

La revendication 1 selon la requête principale se lit :

"Procédé d'élaboration d'une atmosphère de traitement thermique de protection, telle que comportant majoritairement de l'azote et de 2 à 30 % d'espèces réductrices H<sub>2</sub> et CO, selon lequel on fait réagir par voie catalytique un mélange d'hydrocarbure et d'un azote

impur ayant une teneur résiduelle en oxygène supérieure à 0,5%,

**caractérisé** en ce que la réaction est effectuée à une température située dans une gamme allant de 400 à 900°C, avec un catalyseur à base de métal précieux."

La revendication 1 selon la requête auxiliaire se lit :

"Procédé d'élaboration d'une atmosphère de traitement thermique de protection, telle que comportant majoritairement de l'azote et de 2 à 30% d'espèces réductrices H<sub>2</sub> et CO, selon lequel on fait réagir par voie catalytique un mélange d'hydrocarbure et d'un azote impur ayant une teneur résiduelle en oxygène supérieure à 0,5 %,

**caractérisé** en ce que la réaction est effectuée à une température située dans une gamme allant de 400 à 800°C, avec un catalyseur à base de métal précieux, la teneur résiduelle en oxygène de l'azote impur étant comprise entre 0,5 et 7%."

III. Suite aux répliques des intimées (opposantes) au mémoire de recours, la Chambre a convoqué les parties à une procédure orale pour le 6 novembre 2002. Comme annoncé dans sa lettre du 7 octobre 2002, la requérante n'y était pas représentée.

IV. A la fin de la procédure orale, qui s'est tenue à la date prévue, les requêtes des parties étaient les suivantes :

La requérante demande, conformément à ses écrits, l'annulation de la décision contestée et le maintien du brevet sur la base des revendications 1 à 8 selon la requête principale ou sur la base des revendications 1 à 6 selon la requête auxiliaire, toutes deux déposées avec son mémoire du 15 mai 1999.

Les intimées demandent conjointement le rejet du recours.

V. La requérante a, dans son mémoire, argumenté comme suit :

Le document E5 représente l'état de la technique le plus proche. Ce document concerne l'utilisation de catalyseurs traditionnels au nickel mis en oeuvre à haute température, utilisés dans des générateurs conventionnels de type endothermique. Le document E5, ne donne aucune indication concernant le problème à la base de l'invention (économie d'énergie et éviter la formation de suies) ou se rapportant à sa solution qui consiste à utiliser des catalyseurs à base de métal précieux, afin d'effectuer une réaction catalytique à basse température, en milieu appauvri en oxygène, et d'obtenir ainsi des atmosphères de protection faiblement réductrices. Ces indications ne sont pas d'avantage divulguées par les autres documents cités par les intimées.

En particulier, le document E13 ne se rapporte pas à l'élaboration d'atmosphères de protection mais à la fabrication de gaz de synthèse fortement réducteurs, comportant plus de 60% d'espèces réductrices dans l'azote. On ne voit donc pas comment l'homme du métier pourrait trouver dans ce document une quelconque

incitation à fabriquer une atmosphère de protection à partir d'un mélange d'hydrocarbure et d'une atmosphère appauvrie en oxygène, étant donné que dans le document E13 du méthane et un mélange gazeux correspondant à l'air sont convertis à basse température en gaz de synthèse.

VI. Les intimées ont présenté les arguments suivants :

Le document E5 représente sans conteste l'état de la technique le plus proche. Il est connu de ce document de fabriquer un mélange ayant une teneur en oxygène comprise entre 1 et 21%, à partir d'azote commercial et d'air comprenant un pourcentage d'oxygène, puis, par conversion de ce mélange avec du gaz naturel (méthane), de produire une atmosphère de traitement appropriée aussi bien à un traitement thermique pur, c'est-à-dire sans modification chimique des éléments traités, qu'à un traitement thermo-chimique. Les atmosphères faiblement réductrices sont neutres et servent de gaz de protection. A cet effet, la réaction de formation souhaitée, correspondant à la formule

$$xN_2 + O_2 + 2CH_4 \text{ --- } 2CO + 4H_2 + xN_2$$

est favorisée par rapport à d'autres réactions du même type, par la mise en oeuvre d'un catalyseur au nickel à des températures de 950 à 1000°C. Cet état de la technique correspond également au point de départ mentionné dans le brevet en litige. Partant, le problème technique à résoudre est de modifier le procédé connu de manière à produire une atmosphère protectrice à basse température afin de réduire les coûts énergétiques et d'éviter la formation de suies.

Il est connu du document E13 de soutenir la réaction de formation ci-dessus à des températures de l'ordre de

775°C au moyen d'un catalyseur à base de ruthénium utilisé comme métal précieux. Ce document divulgue en particulier la fabrication de gaz de synthèse sans ou avec une dilution de seulement 57% d'azote. Il est en outre indiqué qu'avec dilution, non seulement le rendement mais aussi la sélectivité de la conversion sont améliorés. Ainsi, le préjugé avancé par la requérante contre l'utilisation d'un catalyseur dans le cas de dilutions élevées d'azote, est sans objet. Comme dans le présent brevet, le meilleur rendement est obtenu avec le rapport stoechiométrique de 2/1 entre le méthane et l'oxygène.

L'objet de la revendication 1 selon la requête auxiliaire n'implique pas non plus d'activité inventive, car selon ce document on utilise également de l'azote industriel contenant de 2 à 5% d'oxygène.

### **Motifs de la décision**

1. Le recours est recevable
  
2. Le fait que les revendications satisfont aux exigences de l'article 123 CBE et que leur objet est nouveau vis-à-vis des documents cités, n'a pas été contesté. La Chambre n'a pas non plus d'objection à formuler à ce sujet.
  
3. *Activité inventive*
  - 3.1 Requête principale
    - 3.1.1 Le document E5 représente l'état de la technique qui a servi de point de départ à la requérante pour formuler

le préambule de la revendication 1. La Chambre se rallie à l'opinion unanime des parties pour considérer ce document comme étant le plus proche.

Le document E5 divulgue la fabrication de gaz de traitement constitués d'azote et d'espèces réductrices CO et H<sub>2</sub> en proportions variables, notamment de méthane et d'azote industriel à environ 1% d'oxygène, dont la teneur en oxygène est relevée jusqu'à 21%, selon les besoins, par addition d'air dans le mélange (cf. passage entre les pages 378 et 379). Mais on peut aussi utiliser un azote industriel contenant de 2 à 5% d'oxygène (cf. page 381, premier paragraphe). La conversion souhaitée en CO et H<sub>2</sub> s'oppose alors à la conversion en éléments non-réactifs CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O (cf. page 378, première équation). La mise en oeuvre d'un catalyseur au nikel à des températures de 950 à 1000°C déplace l'équilibre de la réaction en faveur de la formation des éléments réactifs CO et H<sub>2</sub> (cf. page 379, avant-dernier paragraphe). On obtient de cette façon, selon les proportions d'azote oxygéné et de méthane présentes dans le mélange, aussi bien des atmosphères de traitement ayant un effet plus ou moins réducteur que des atmosphères protectrices neutres ayant une teneur en espèces réductrices du même ordre que celle du domaine revendiqué (cf. page 377).

3.1.2 L'objet de la revendication 1 diffère de cet état de la technique par sa partie caractérisante, selon laquelle la réaction est effectuée à une température située dans une gamme allant de 400 à 900°C, avec un catalyseur à base de métal précieux.

3.1.3 Selon la description du brevet en litige (cf. colonne 1, lignes 32-35), le procédé connu a pour inconvénients un

coût énergétique significatif en raison de la température requise pour la réaction catalytique et la formation de suies dont le nickel est un promoteur.

- 3.1.4 Comme l'homme du métier sait que les catalyseurs sont appropriés aux réactions chimiques qu'ils stimulent et que la température de la réaction est spécifique pour chaque catalyseur, il est évident que, soucieux de réduire les coûts énergétiques du procédé, l'homme du métier s'efforcera de choisir parmi les divers catalyseurs appropriés à chaque type de réaction, celui qui travaille à la température la plus basse. Ainsi, afin de minorer l'inconvénient des procédés connus coûteux en énergie, l'homme du métier recherchera en premier lieu un autre catalyseur connu et approprié pour cette réaction.

Cette recherche le conduira vers le document E13 qui propose un catalyseur à base de métal précieux tel que du ruthénium, considéré comme catalyseur extrêmement actif et sélectif pour activer la production de CO et H<sub>2</sub> à partir de méthane et d'oxygène à des températures de réaction d'environ 775°C. Bien que le document E13 soit destiné en particulier à la fabrication de gaz de synthèse par mélange non dilué de CO et H<sub>2</sub>, il est néanmoins expliqué que le taux de conversion et la sélectivité de la réaction augmentent avec la dilution croissante d'azote, en raison de la réduction correspondante de la pression partielle de méthane et d'oxygène (cf. page 320, colonne de gauche, avant-dernier paragraphe). Contrairement à l'argumentation de la requérante, l'homme du métier ne sera donc pas dissuadé mais plutôt incité à utiliser le catalyseur à base de métal précieux proposé dans E13 pour fabriquer une atmosphère de protection diluée avec de l'azote

ayant la composition indiquée dans la revendication 1.

3.1.5 Il en résulte que l'objet de la revendication 1 selon la requête principale ne présente pas d'activité inventive.

### 3.2 Requête auxiliaire

L'objet de la revendication 1 selon la requête auxiliaire ne diffère de la requête principale que par le fait que la teneur résiduelle en oxygène de l'azote impur est comprise entre 0,5 et 7%. Mais comme il est également connu de l'état de la technique le plus proche E5 (cf. page 381, première ligne) d'utiliser de préférence un azote industriel ayant une teneur de 2 à 5% d'oxygène, la caractéristique ci-dessus ne peut pas justifier la présence d'une activité inventive.

Par conséquent, l'objet de la revendication 1 selon la requête auxiliaire ne présente pas non plus d'activité inventive.

## **Dispositif**

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

Le recours est rejeté.

Le Greffier :

Le Président :

V. Commare

W. D. Weiß

