

Code de distribution interne :

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

D E C I S I O N
du 28 juin 1995

N° du recours : T 0629/92 - 3.3.2

N° de la demande : 88400073.8

N° de la publication : 0277857

C.I.B. : C01F 7/62

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :
Procédé de purification de chlorure d'aluminium

Demandeur/Titulaire du brevet :
ELF ATOCHEM S.A.

Opposant :
-

Référence :
-

Normes juridiques appliquées :
CBE Art. .56

Mot-clé :
"Activité inventive des revendications modifiées (oui)"

Décisions citées :
-

Exergue :
-



N° du recours : T 0629/92 - 3.3.2

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.2
du 28 juin 1995

Requérant : ELF ATOCHEM S.A.
(Titulaire du brevet) 4 & 8, Cours Michelet
La Défense 10
F - 92800 Puteaux (FR)

Mandataire : Eggert, Hans-Gunther, Dr.
Räderscheidtstr. 1
D - 50935 Köln (DE)

Décision attaquée : Décision de la division d'examen de l'Office européen des brevets du 13 avril 1992 par laquelle la demande de brevet n° 88 400 073.8 a été rejetée conformément aux dispositions de l'article 97(1) 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 n° 88 400 073.8 (n° de publication 0 277 857) a été rejetée par décision de la Division d'examen pour manque d'activité inventive. Cette décision était basée sur les revendications modifiées déposées le 14 octobre 1991 et s'appuyait sur les documents suivants :

D1 : SU-A-859 301 (traduction en français)

D2 : SU-A-214 526 (traduction en français)

D3 : GB-A-342 208.

Dans cette décision, la Division d'examen a considéré qu'il était évident pour un homme du métier désireux résoudre le problème de l'élimination d'impuretés organiques chlorées du chlorure d'aluminium d'essayer tout d'abord les procédés généraux décrits dans D2 et D3. L'effet de destruction, partielle ou complète, d'au moins certaines impuretés organiques chlorées n'était pas surprenant, car le chlorure d'aluminium était bien connu comme catalyseur tant pour l'introduction que pour l'élimination de chlore de molécules organiques (voir par exemple les réactions du type "Friedel-Crafts").

II. La requérante a formé un recours contre cette décision. Dans le mémoire de recours elle a présenté des arguments en faveur de la brevetabilité du procédé revendiqué et a en particulier souligné que la purification décrite dans les trois documents cités concernait l'élimination des chlorures de fer et de titane et non celle d'impuretés organiques chlorées.

Lors de la procédure orale qui s'est déroulée le 28 juin 1985, la requérante a fourni une traduction en français de la demande de brevet japonais

n° Sho 44-31 452/66 (ci-après D4) mentionnée à la page 1 de la présente demande de brevet. Ce document, ainsi que le brevet US 4 541 907 (ci-après D5) lui aussi analysé à la page 1 de la description, ont été commentés pendant la procédure orale. Au cours de cette dernière, la requérante a présenté deux jeux de revendications modifiées à titre de requête principale et de requête subsidiaire respectivement. La revendication 1 de la requête principale a le libellé suivant :

"Procédé pour l'élimination des produits organiques chlorés d'un chlorure d'aluminium anhydre impur, caractérisé en ce que :

- a) on met en contact ledit chlorure d'aluminium avec un bain d'au moins un chloroaluminate contenant au moins un métal réducteur sous forme de poudre, ledit bain étant à une température comprise entre 200°C et 300°C, jusqu'à la destruction partielle ou complète des produits organiques chlorés,
- b) puis on récupère le chlorure d'aluminium de la phase vapeur du bain."

III. La requérante a requis l'annulation de la décision de la Division d'examen et la délivrance d'un brevet sur la base de la requête principale ou de la requête subsidiaire toutes deux déposées au cours de la procédure orale.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.
2. Les revendications modifiées de la requête principale satisfont aux dispositions de l'article 123(2) CBE. En effet la revendication 1 est basée sur la combinaison des caractéristiques des revendications 1, 3 et 5 de la demande telle que déposée et sur la description initiale (cf. page 2, lignes 15 à 17, page 3, lignes 21 à 24, page 4, ligne 37 à page 5, ligne 3, tableaux 1 à 4). Les revendications 2 et 3 correspondent aux revendications initiales 2 et 4 respectivement.
3. Aucun des documents cités ne divulgue un procédé pour l'élimination des produits organiques chlorés d'un chlorure d'aluminium impur, comprenant la combinaison de caractéristiques indiquées dans la revendication 1. Il est à noter en particulier que les procédés de purification du chlorure d'aluminium anhydre décrits dans D2 et D3 permettent d'éliminer le chlorure de fer, cependant ces documents ne mentionnent pas l'élimination des impuretés organiques chlorées. Quant à D1, il traite de l'élimination des impuretés chlorure de fer et chlorure de titane. Par conséquent, le procédé selon la revendication 1 de la requête principale est nouveau.
4. D5 concerne, comme la présente demande de brevet, un procédé d'élimination des produits organiques chlorés, notamment de l'hexachlorobenzène, contenus dans le chlorure d'aluminium anhydre lorsque celui-ci est préparé par réaction de l'alumine, du chlore et d'un agent réducteur carboné tel que le coke. Ce document est donc considéré comme représentant un point de départ plus approprié que D1, D2 ou D3 pour la détermination du

problème à la base de la présente demande de brevet puisque ces derniers ne traitent pas de l'élimination des impuretés organiques chlorées.

Le procédé décrit dans D5 permet d'obtenir un chlorure d'aluminium anhydre exempt d'impuretés organiques chlorées par décomposition de ces dernières. Cette décomposition est obtenue par passage du chlorure d'aluminium impur à travers un lit fluidisé d'alumine et de charbon à une température de 800°C à 900°C (voir résumé ; figure 2 ; col.3, ligne 54 à col.4, ligne 19 ; col. 4, lignes 26 à 29). Comme indiqué à la page 1 de la demande de brevet, ce procédé présente l'inconvénient d'utiliser des températures élevées.

- 4.1 A partir de cet état de la technique, le problème technique à la base de la présente demande de brevet peut donc être défini comme étant de trouver un procédé qui permette d'éliminer les composés organiques chlorés contenus dans le chlorure d'aluminium anhydre impur sans présenter cet inconvénient.

Conformément à la revendication 1, la solution proposée consiste à mettre en contact le chlorure d'aluminium impur avec un bain d'au moins un chloroaluminate contenant au moins un métal réducteur sous forme de poudre, jusqu'à destruction partielle ou complète des produits organiques chlorés, ledit bain étant à une température comprise entre 200°C et 300°C, puis à récupérer le chlorure d'aluminium de la phase vapeur du bain.

Il ressort des exemples de la description que ces mesures conduisent à une élimination pratiquement complète des impuretés organiques chlorées du chlorure d'aluminium malgré les températures de traitement nettement inférieures à celles utilisées dans le procédé selon D5.

Par conséquent, il est crédible que le problème posé ait été résolu par le procédé revendiqué.

4.2 Le procédé de décomposition des composés organiques chlorés divulgué dans D5 est utilisé soit pour traiter le chlorure d'aluminium impur sortant directement du réacteur de préparation (10) (cf. figure 2), soit pour traiter les vapeurs d' AlCl_3 et de composés organiques chlorés C_xCl_y qui quittent le bain de chloroaluminate de sodium (40) dans le cas où le chlorure d'aluminium impur est directement utilisé pour la fabrication de l'aluminium dans la cellule d'électrolyse (20) (cf. figure 1, revendication 1). Dans ce dernier cas, bien que le mélange comprenant AlCl_3 et C_xCl_y soit envoyé dans un bain de chloroaluminate de sodium (40), les composés organiques chlorés n'y sont pas détruits puisqu'ils sont ensuite entraînés avec le chlorure d'aluminium dans le lit fluidisé du réacteur (50) (voir col. 3, lignes 46 à 58). Cet enseignement n'aurait pas incité l'homme du métier à remplacer le traitement du chlorure d'aluminium impur dans le lit fluidisé d'alumine et de charbon à des températures de 800 à 900°C par une mise en contact avec un bain d'un chloroaluminate contenant un métal réducteur sous forme de poudre, à une température entre 200 et 300°C.

4.3 Quant à D4 qui concerne aussi la purification du chlorure d'aluminium anhydre pour en éliminer l'hexachlorobenzène, il enseigne que l'hexachlorobenzène peut être complètement éliminé en mettant le chlorure d'aluminium impur en contact avec un métal chauffé à haute température ou à l'état fondu, de préférence avec l'aluminium, et dans ce cas la température est d'environ 600°C. Le carbone résultant de la décomposition de l'hexachlorobenzène est précipité à la surface de l'aluminium qui est régénéré par chauffage à environ 600°C en présence d'air (cf. page 4 complète ; page 5,

exemple 1 ; page 6, revendication). Dans l'exemple, l'aluminium est utilisé sous forme d'anneaux de Raschig. Ce document ne suggère ni d'opérer dans un bain d'un chloroaluminate, ni d'effectuer le traitement de purification à des températures aussi basses que 200 à 300°C, et ne contient aucune information susceptible de mettre l'homme du métier confronté au problème indiqué ci-dessus sur la voie de l'invention.

- 4.4 D1 divulgue un procédé de purification de chlorure d'aluminium anhydre par réduction des impuretés dans la masse fondue de chloroaluminate de sodium, en présence d'aluminium métallique, puis extraction du produit purifié de la masse fondue par distillation. Cette purification est effectuée en trois étapes mettant en oeuvre des températures différentes, à savoir 150 à 180°C (1^{ère} étape), puis 200 à 220°C (2^{ème} étape) et enfin 250 à 280°C dans la 3^{ème} étape, ceci afin de diminuer la perte de produit, d'augmenter la productivité du procédé et de permettre sa marche en continu (cf. revendication 1).

Cependant il n'est question dans ce document que de l'élimination de FeCl₃ et TiCl₄, et le problème de l'élimination de composés organiques chlorés éventuellement présents dans le chlorure d'aluminium de départ n'est absolument pas évoqué. De plus D1 ne donne aucune information quant à la provenance dudit chlorure ou au procédé utilisé pour le préparer. Par conséquent aucune conclusion ne peut être tirée en ce qui concerne l'absence ou la présence d'impuretés organiques chlorées. Même si de telles impuretés avaient été présentes, rien ne laisse supposer dans D1 qu'elles auraient pu être détruites par le traitement décrit. Dans ce contexte il est à souligner que selon D4 la température doit être d'environ 600°C dans le cas de l'utilisation de l'aluminium pour décomposer et éliminer l'hexachlorobenzène alors que la température maximale

utilisée dans D1 est de 280°C. Dans ces circonstances et compte tenu aussi du fait que les composés organiques chlorés tels que l'hexachlorobenzène ont des propriétés chimiques complètement différentes de celles du chlorure de fer ou du chlorure de titane, l'homme du métier ne pouvait pas s'attendre, au vu de D1, à ce que la mise en contact du chlorure d'aluminium impur avec un bain d'un chloroaluminate à une température relativement basse et contenant de l'aluminium en poudre, puisse permettre d'éliminer les impuretés organiques chlorées. Dans ces conditions, il n'aurait pas été encouragé à essayer d'utiliser lesdites mesures pour l'élimination des impuretés organiques chlorées du chlorure d'aluminium. Le fait que $AlCl_3$, soit connu comme catalyseur dans les réactions de Friedel-Crafts ne permet pas d'aboutir à une conclusion différente.

- 4.5 D2, comme D1, ne traite pas de l'élimination des impuretés organiques chlorées. Les considérations précédentes du point 4.4 s'appliquent de façon analogue au procédé divulgué dans D2 d'autant plus que la réduction de l'impureté chlorure de fer au moyen des copeaux d'aluminium est effectuée dans ce document à des températures variant progressivement de 130 à 220°C, c'est-à-dire à une température maximale inférieure à celle indiquée dans D1 (voir D2, revendication et exemple).
- 4.6 D3 décrit un procédé de purification du chlorure d'aluminium anhydre permettant d'obtenir du chlorure d'aluminium exempt de chlorure de fer. Le chlorure d'aluminium brut est amené au contact d'un bain fondu comprenant du chlorure d'aluminium et un chlorure d'un métal alcalin ou alcalino-terreux, en présence d'un agent réducteur, par exemple des copeaux d'aluminium (cf. revendication 1 et exemple). Dans l'exemple le bain fondu est maintenu à une température d'environ 350°C et le

chlorure d'aluminium impur de départ a été préparé par réaction du chlore et de l'oxyde de carbone avec la bauxite.

Ce document ne mentionne pas la présence de composés organiques chlorés en tant qu'impuretés dans le produit à purifier. En outre, il ressort de D4 que la préparation du chlorure d'aluminium par réaction d'un matériau à base d'alumine avec du chlore et de l'oxyde de carbone conduit à un produit ne contenant pas d'hexachlorobenzène contrairement au cas où l'agent réducteur utilisé lors de la préparation est le charbon ou le coke (voir page 1 et page 2, les deux premières lignes). Comme souligné par la requérante, le chlorure d'aluminium impur de D3 ne contient donc pas d'hexachlorobenzène. De plus, D3 ne renferme aucune information suggérant que le traitement décrit pourrait éventuellement être efficace pour éliminer les impuretés organiques chlorées. Il est à noter aussi que pour arriver à la solution revendiquée l'homme du métier aurait dû diminuer la température de traitement mentionnée dans D3 et donc s'écarter de la température de 600°C jugée nécessaire dans D4 pour l'élimination de composés organiques chlorés tels que l'hexachlorobenzène en présence d'aluminium. Par conséquent D3 n'apporte aucun renseignement complémentaire susceptible d'inciter l'homme du métier à utiliser le procédé décrit dans D1 ou D2 pour l'élimination des produits organiques chlorés tels que les aromatiques contenus dans le chlorure d'aluminium impur.

- 4.7 Les autres documents cités dans le rapport de recherche sont, quant à leur pertinence, soit équivalents aux documents considérés ci-dessus, soit moins pertinents et ne changent donc en rien les conclusions précédentes.

Il résulte de ce qui précède que la revendication 1 de la requête principale est considérée comme satisfaisant à la condition d'activité inventive requise dans les articles 52(1) et 56.

5. Les revendications dépendantes 2 et 3 qui concernent des modes de réalisation particuliers de la revendication 1 bénéficient de la brevetabilité de cette dernière et sont donc aussi acceptables. Dans ces circonstances, il est inutile d'examiner la requête subsidiaire.

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

1. La décision de la Division d'examen est annulée.
2. L'affaire est renvoyée à la première instance pour la délivrance d'un brevet sur la base des trois revendications selon la requête principale déposée au cours de la procédure orale et d'une description à adapter.

Le Greffier :

Le Président :

E. Görgmaier

P. A. M. Lançon

