

Code de distribution interne :

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

D E C I S I O N
du 16 décembre 1998

N° du recours : T 0902/97 - 3.2.3

N° de la demande : 91401198.6

N° de la publication : 0456575

C.I.B. : F25J 3/04

Langue de la procédure : FR

Titre de l'invention :

Procédé et appareil d'épuration par adsorption d'air destiné à être distillé

Demandeur/Titulaire du brevet :

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

Opposante :

LINDE AKTIENGESELLSCHAFT

Référence :

-

Normes juridiques appliquées :

CBE Art. 56

Mot-clé :

"Activité inventive (reconnue)"

Décisions citées :

-

Exergue :

-



N° du recours : T 0902/97 - 3.2.3

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.2.3
du 16 décembre 1998

Requérante : LINDE AKTIENGESELLSCHAFT
(Opposante) Zentrale Patentabteilung
D - 82049 Höllriegelskreuth (DE)

Mandataire :

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

Mandataire :

Décision attaquée : Décision intermédiaire de la division d'opposition de
l'Office européen des brevets signifiée par voie
postale le 30 juin 1997 concernant le maintien du
brevet européen n° 0 456 575 dans une forme modifiée.

Composition de la Chambre :

Président : C. T. Wilson
Membres : J. du Pouget de Nadaillac
M. K. S. Aúz Castro

Exposé des faits et conclusions

I. Le présent recours conteste la décision datée du 30 juin 1997 de la Division d'opposition, qui a maintenu le brevet européen EP-B1-0 456 575 sous une forme modifiée au motif que, contrairement à l'opinion de l'opposante - ci-après requérante - l'objet des revendications de ce brevet, telles que modifiées le 10 juin 1997, implique une activité inventive, notamment à l'égard de l'art antérieur représenté par le document D1 (DE-A1-3 702 190).

II. La revendication 1 a le libellé suivant :

"Procédé de dessiccation-décarbonation d'air atmosphérique par adsorption avant son entrée dans la boîte froide (3) d'une installation de distillation d'air, du type dans lequel l'air comprimé est refroidi à une température d'adsorption (TA) et épuré par adsorption par passage dans un premier sens à travers une masse d'adsorbant (8), un gaz résiduaire provenant de l'installation de distillation à une température de régénération (TR) traversant ensuite la masse d'adsorbant en sens opposé pour la régénérer, après quoi la masse d'adsorbant est remise en phase d'adsorption, le gaz résiduaire utilisé pour la régénération étant chauffé, pendant toute la régénération, à une température de régénération (TR) sensiblement constante modérée, supérieure à la température de l'air entrant dans la masse d'adsorbant, par échange de chaleur (4, 4a, 16), la différence entre la température de régénération (TR) et la température d'adsorption (TA) n'excédant pas 50°C, la durée d'un cycle adsorption/régénération étant au moins égale à 30 minutes, et l'air épuré sortant de la masse d'adsorbant étant à une température inférieure à la température de régénération (TR)."

La revendication indépendante 7 est rédigée comme suit :

"Appareil de dessiccation-décarbonation d'air atmosphérique par adsorption avant son entrée dans une boîte froide (3) d'une installation de distillation d'air, comprenant une masse d'adsorbant (8) pour épuration de l'air, comprimé par un compresseur (1) et refroidi à une température d'adsorption (TA), qui passe à travers ladite masse (8) dans un premier sens, ladite masse étant régénérable par un gaz résiduaire de l'installation de distillation qui traverse ladite masse (8) en sens opposé, caractérisé en ce qu'il comprend un premier (12) et un second (4) moyens d'échange de chaleur mettant en relation d'échange thermique l'air épuré par la masse (8) avec l'air sortant du compresseur puis avec le gaz résiduaire avant son entrée dans la masse (8), chauffant ainsi le gaz résiduaire à une température de régénération (TR) supérieure à la température d'adsorption (TA), la différence entre la température de régénération et la température d'adsorption (TA) n'excédant pas 50°C."

III. Le recours a été formé le 22 août et la taxe de recours payée le même jour. Avec le mémoire de recours reçu le 6 novembre 1997, la requérante a cité pour la première fois le document suivant de l'art antérieur :

D7 : The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 53, avril 1975, pages 234 à 238 relatives à l'article titré : "On the possibility of omitting the Cooling Step in Thermal Adsorption Cycles".

Une procédure orale a eu lieu le 16 décembre 1998. Au cours de cette procédure, la discussion a essentiellement porté sur l'activité inventive impliquée.

IV. La requérante a fait valoir les arguments suivants :

Dans un procédé de régénération, l'énergie de régénération suit l'équation $E = N \times \Delta T$, avec N représentant la quantité de gaz de régénération et ΔT la différence entre la température de ce gaz et celle du lit adsorbant. Or un procédé basé sur des différences de pression varie entre deux extrêmes possibles, l'un dit à "thermo-pulses" décrit dans la partie introductive du brevet attaqué et l'autre divulgué par le document D1. Dans le premier, le ΔT est élevé et N petit, et il s'applique de préférence aux grosses installations dans lesquelles une production maximale des deux gaz séparés, donc de l'azote et de l'oxygène, est recherchée, si bien qu'un gaz résiduaire n'est disponible qu'en petites quantités. Dans l'autre procédé extrême, celui divulgué par D1, c'est l'inverse, c'est-à-dire un ΔT réduit et un N élevé, et les petites installations, qui en général produisent un seul des deux gaz, sont concernées. Le spécialiste sait qu'il peut agir entre ces deux extrêmes, et c'est exactement ce que fait la présente invention, qui applique un ΔT modéré compensé par un N assez grand. La différence de température ne dépasse pas 50°C. La présente invention vise un procédé pour de petites installations et, par suite, se rapproche davantage de l'extrême selon D1 que de l'autre. L'antériorité D1 enseigne une température du gaz résiduaire qui est supérieure à celle de l'air entrant dans la masse d'adsorbant. De plus, l'homme du métier, qui sait que la température du lit d'adsorbant est loin d'augmenter en proportion avec celle du gaz le traversant et reste donc limitée, n'ignore pas que la température du gaz de régénération peut être même nettement plus élevée que celle de l'air, à l'instar de ce qui est réalisé dans le procédé "thermo-pulses". Le chauffage du gaz résiduaire à une température supérieure, tel que revendiqué, est donc évident. Quant à la présence de moyens de réchauffage du gaz résiduaire

situés dans ce but entre les adsorbateurs et la boîte froide de l'installation de distillation, il ne peut être affirmé que D1 tend à l'éviter, puisque le passage de la colonne 4, lignes 49 à 60, de cet art antérieur suggère des moyens d'échange de chaleur à cet emplacement.

V. L'intimée - propriétaire du brevet- a opposé les arguments suivants :

L'équation avancée par la requérante ne correspond pas à la réalité, car la variation de températures ΔT est indéterminée. En effet, la température d'un lit d'adsorbant varie sur la longueur du lit, et dans le procédé selon D1 en particulier, il est difficile de parler de température du plateau d'adsorbant à cause de la grande quantité d'adsorbant. Le vrai ΔT à considérer serait la différence de températures entre l'entrée et la sortie de l'adsorbant, en tenant compte de la moyenne des deux températures dans le temps.

De toute façon, l'invention telle que revendiquée ne peut pas être considérée comme un compromis entre les deux extrêmes mises en avant par la requérante.

L'invention pose, en effet, des conditions plus particulières, et notamment celle d'une température du gaz résiduaire supérieure à celle de l'air épuré. Cette condition n'est divulguée nulle part dans l'art antérieur. Elle présuppose un apport de chaleur additionnel, qui ne peut s'expliquer que par le fait que de la chaleur a été perdue. Autrement dit, la présente invention s'accommode de ce que durant la phase d'adsorption le front de chaleur sorte de l'adsorbateur et entre dans la boîte froide, ce qui est en contradiction totale avec l'enseignement de D1. L'inconvénient ainsi créé pour la boîte froide est négligeable en raison des températures modérées utilisées dans l'invention. Dans le procédé "thermo-pulses", ce sont au contraire des

températures du gaz résiduaire élevées, qui sont utilisées, nettement supérieures à celles de l'invention. Ces températures élevées exigent une étape de refroidissement, alors que dans la présente invention cette étape est évitée. Vis-à-vis du procédé selon D1, la présente invention permet aussi de réduire substantiellement la masse d'adsorbant. En ce qui concerne le passage de la colonne 4 de D1, il s'explique simplement par la température de 43°C, trop élevée pour une boîte froide. Le but du moyen d'échange de chaleur selon ce passage ne peut être comparé au but des moyens d'échange selon la présente invention.

- VI. La requérante demande l'annulation de la décision contestée et la révocation du brevet européen n° 0 456 575.

L'intimée demande le rejet du recours.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.
2. L'art antérieur le plus proche de l'objet des revendications ci-dessus est représenté par le document D1, qui est l'unique art antérieur mentionné durant la procédure orale devant la chambre de recours.
3. Dans cet art antérieur, un procédé et un appareil de dessiccation-décarbonation d'air atmosphérique par adsorption avant son entrée dans la boîte froide d'une installation de distillation d'air sont décrits.

Ils utilisent le système usuel d'au moins deux masses d'adsorbants disposées en parallèle. Le plus souvent, chaque masse comprend un lit d'alumine et un lit de

tamis moléculaire. Pendant qu'une masse est en phase active, c'est-à-dire en phase d'adsorption des impuretés de l'air, préalablement comprimé, qui traverse la masse en direction de la boîte froide de distillation, l'autre masse d'adsorbant est, pour sa part, en phase de régénération, c'est-à-dire qu'elle est nettoyée de ces mêmes impuretés grâce à un gaz résiduaire provenant de l'installation de distillation et circulant en sens opposé pour être, le plus souvent, évacué vers l'extérieur. Durant la phase active dite d'adsorption, qui s'effectue à la pression de l'air comprimé, les températures doivent être sensiblement basses afin de provoquer la condensation de la vapeur d'eau et de l'anhydride carbonique et ainsi améliorer la capacité d'adsorption de la masse d'adsorbant, d'autant que l'adsorption elle-même provoque une augmentation de chaleur, dite chaleur d'adsorption. La phase d'adsorption est interrompue, lorsque la masse d'adsorbant est complètement chargée. Durant la phase de régénération, au contraire, des pressions plus faibles et éventuellement des températures plus hautes, voire nettement plus élevées (100 à 350°C), sont utilisées, les variations de pression ainsi créées et l'élévation de température facilitant la purge des impuretés. Si des températures élevées sont utilisées pour la régénération, une étape de refroidissement de la masse d'adsorbant régénéré doit suivre la phase de régénération avant la mise en phase active de l'adsorbant. Ceci complique l'installation. Si, par contre, durant cette phase, les températures diffèrent peu de celles de la phase active, la régénération nécessite une plus grande quantité de gaz résiduaire. Les procédés avec leurs avantages et inconvénients varient donc selon que l'accent soit mis sur les variations de pression (procédé PSA : "pressure-swing adsorption") ou sur les variations de température, ou encore sur une combinaison des deux.

4. Le document D1 part d'un tel art antérieur général connu. Le procédé selon cette antériorité utilise essentiellement la différence de pression et vise à éviter à la sortie des adsorbants la présence d'accumulateurs ou d'échangeurs de chaleur, qui dans l'art antérieur servaient à absorber le front de chaleur créé par la chaleur d'adsorption. Le document propose pour cela d'interrompre la phase active d'adsorption, avant que le front de chaleur n'ait eu le temps d'aboutir à la sortie de la masse d'adsorbant, et d'utiliser cette chaleur conservée dans l'adsorbant pour la phase suivante de régénération. Comme il est connu que le front de chaleur dans la masse d'adsorbant progresse plus vite que le front d'adsorption lui-même, la durée de la phase active d'adsorption doit donc être choisie relativement courte. Pour une masse d'adsorbant donnée, dont la capacité d'adsorption dans l'art antérieur aurait permis un temps d'adsorption de 1,5 à 2 heures, la durée de la phase active est choisie entre 12 à 20 minutes. Il est même indiqué dans le document D1, colonne 3, lignes 41 à 47, que, du fait que la capacité d'adsorption diminue avec l'élévation des températures, la phase d'adsorption est interrompue de manière à laisser une partie froide en fin du dispositif d'adsorbant - donc en aval du front de chaleur -, cette partie froide formant un filtre terminal. Les températures dans la masse d'adsorbant varient peu entre les deux phases adsorption et régénération : Pour une variation de pression de 6 à 1 bar entre ces deux phases, ces températures oscillent de plus ou moins 15 à 20°C de la température d'introduction de l'air. Si, par exemple, la température de l'air entrant dans une masse d'adsorbant est de 40°C, la température de la masse d'adsorbant peut s'élever à environ 55°C pendant l'adsorption et redescendre à 25°C pendant la phase de régénération. Avec la réduction de la durée de la phase active, la durée de la phase de régénération est aussi réduite. Les exemples chiffrés de D1 donnent un cycle

complet adsorption/régénération d'environ 32 minutes avec un air comprimé à 6 bar, entrant à 38°C (température TA) dans la masse d'absorbant et le quittant à 43°C. Cette dernière température équivaut à la température moyenne (TR) du gaz de régénération. La description de D1 précise bien en colonne 5, lignes 17 à 19, que l'air épuré sort de la masse d'adsorbant à une température égale à celle du gaz résiduaire avant son entrée dans ladite masse.

5. Il ressort de ce qui précède que, dans le procédé selon D1, la température de régénération (TR) est modérée, ce qui permet d'éviter l'étape de refroidissement de l'adsorbant après sa régénération. Cette température, néanmoins, est supérieure, dans les exemples données, à la température (TA) de l'air **entrant**, étant égale à la température de l'air **sortant** de l'absorbant.

Par suite, le procédé selon la revendication 1 du brevet contesté diffère de cet art antérieur en ce que, notamment, l'air épuré sort de la masse d'adsorbant à une température inférieure à la température de régénération (TR). Cette caractéristique distinctive entraîne implicitement que le chauffage de l'air résiduaire mentionné dans la revendication 1 ne soit pas le seul résultat d'un échange de chaleur avec la chaleur d'adsorption, mais soit le résultat d'un chauffage additionnel. Ceci est confirmé par les revendications d'appareil 7 à 10, qui précisent les différents moyens de chauffage additionnels possibles.

6. En raison du bilan énergétique, cet apport de chaleur additionnel implique qu'une perte de chaleur se soit produite, et de ce fait que le front de chaleur, qui résulte de la chaleur d'adsorption, **sorte** de la masse d'adsorbant et parvienne à la boîte froide. En raison des températures modérées utilisées dans le cadre de la présente invention, ceci ne présente qu'un faible

inconvenient. La description du brevet attaquée confirme cette sortie du front de chaleur, en indiquant que l'air réchauffé par la chaleur d'adsorption pénètre dans la ligne d'échange thermique de la boîte froide et que le basculement en phase de régénération s'effectue, lorsque le front d'adsorption (qui est moins rapide que le front de chaleur) est proche de la sortie de l'adsorbent.

Le procédé revendiqué par la revendication 1 du brevet contesté s'écarte donc de l'enseignement de l'antériorité D1, puisqu'il suppose une sortie du front de chaleur de la masse d'adsorbant, alors que le procédé selon D1 visait à retenir ce front à l'intérieur de cette masse. Il y a donc une antinomie entre ces deux procédés, et dans ces conditions il ne peut être prétendu que le document D1 suggère la solution revendiquée.

7. Selon l'intimée, la présente invention permet de réduire de façon substantielle la quantité d'adsorbant par rapport au procédé de D1. Ce résultat n'était pas divulgué dans les documents originaux du brevet contesté, mais paraît plausible, puisque selon la présente invention, la phase d'adsorption est interrompue lorsque le front d'adsorption atteint la sortie de la masse d'adsorbant. Le procédé selon la présente invention utilise donc la pleine capacité d'adsorption de la masse d'adsorbant, alors que la condition de maintien du front de chaleur **dans** la masse d'adsorbant selon le procédé de D1 implique un front d'adsorption en amont, et donc une utilisation réduite de cette masse, qui par suite - à adsorption égale - doit être quantitativement plus importante.

8. L'argument de la requérante, selon lequel la solution revendiquée ne serait que le résultat d'un compromis entre deux extrêmes, représenté l'un par le procédé de D1 (procédé sans variations substantielles de

températures des adsorbateurs, mais exigeant de grosses quantités de gaz résiduaire) et l'autre par le procédé décrit dans la partie introductive du brevet contesté (procédé "thermo-pulses" : emploi de températures très différentes avec des quantités réduites de gaz résiduaire) ne peut être suivi. Outre l'aspect "a posteriori" éventuel d'un tel argument, il ne pourrait être valable que si chaque extrême, tel que divulgué, laissait la voie ouverte en direction de l'autre extrême. Or ceci n'est pas le cas avec la divulgation de D1, dont le but premier est d'offrir un procédé à variations de pression, qui en ce qui concerne son bilan énergétique marche de façon optimale **sans l'aide** d'accumulateurs ou d'échangeurs de chaleur, autrement dit, entre autres, sans moyens qui permettent de réchauffer le gaz résiduaire. En outre, comme l'indique le brevet contesté, l'emploi de hautes températures dans le cas de l'autre extrême crée un front de chaleur qui traverse entièrement l'adsorbant. Comme cela a été vu ci-dessus, D1 exclut cette possibilité.

9. La requérante a, par ailleurs, souligné qu'un passage de D1, en l'occurrence la colonne 4, lignes 49 à 60, prévoit la présence d'échangeurs de chaleur après les adsorbateurs. En fait, dans ce passage, il est uniquement question de l'adaptation des températures des gaz entrant ou sortant de la boîte froide aux températures très différentes apparaissant entre la boîte froide et les échangeurs de chaleur en amont des adsorbateurs. Ceci s'explique par la température relativement élevée de 43°C de l'air épuré et du gaz résiduaire dans les exemples de D1. Une telle température est sensiblement éloignée des températures ordinaires d'une boîte froide. Le but est donc uniquement de rapprocher les températures de la boîte froide de celles des adsorbateurs. La fonction de l'échangeur mentionné est donc différente de celle d'échangeurs de chaleur, qui pourraient servir de moyens de réchauffage du gaz

résiduaire. Par conséquent, ce passage ne peut suggérer ni le procédé revendiqué, ni même le procédé "thermo-pulses".

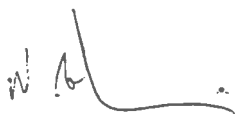
9. Dans son mémoire de recours, la requérante avait combiné les documents D1 et D7 pour nier la présence d'une activité inventive. Durant la procédure orale devant la chambre, la requérante n'a plus invoqué le document D7, confirmant donc l'opinion de la chambre, qui dans sa notification destinée à préparer la procédure orale avait jugé que le contenu de ce document n'était pas pertinent. De ce fait, tenant compte de l'introduction tardive de ce document et de son absence de pertinence, la chambre, faisant usage du pouvoir discrétionnaire que lui confère l'article 114(2) CBE, ne prend pas ce document en considération.
10. Il s'ensuit qu'une absence d'activité inventive impliquée par les objets des revendications 1 et 7 du brevet en cause n'a pas été mise en évidence, et qu'en conséquence le brevet doit être maintenu sous la forme modifiée, telle qu'acceptée par la première instance.

Dispositif

Pour ces motifs, il est statué comme suit :

Le recours est rejeté.

Le Greffier :



N. Maslin

Le Président :



C. T. Wilson