

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la
Propriété Intellectuelle
Bureau international



(10) Numéro de publication internationale
WO 2022/069625 A1

(43) Date de la publication internationale
07 avril 2022 (07.04.2022)

(51) Classification internationale des brevets :
G01R 33/56 (2006.01) G01N 24/08 (2006.01)

(21) Numéro de la demande internationale :
PCT/EP2021/076938

(22) Date de dépôt international :
30 septembre 2021 (30.09.2021)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :
FR2009995 30 septembre 2020 (30.09.2020) FR

(71) Déposant : **TOTALENERGIES SE** [FR/FR] ; La Défense
6 2 Place Jean Millier, 92400 COURBEVOIE (FR).

(72) Inventeurs : **PONDAVEN, Simon** ; 25 rue lieutenant-colonel Girard, 69007 LYON (FR). **FRELECHOUX, Richard** ; 11 rue Francis Sermet, 69970 CHAPONNAY (FR). **VIEL, Stéphane** ; 36 Boulevard Leau, 13008 MARSEILLE (FR). **ZIARELLI, Fabio** ; Avenue des Carriers Les Terres Marines E40, 13260 CASSIS (FR).

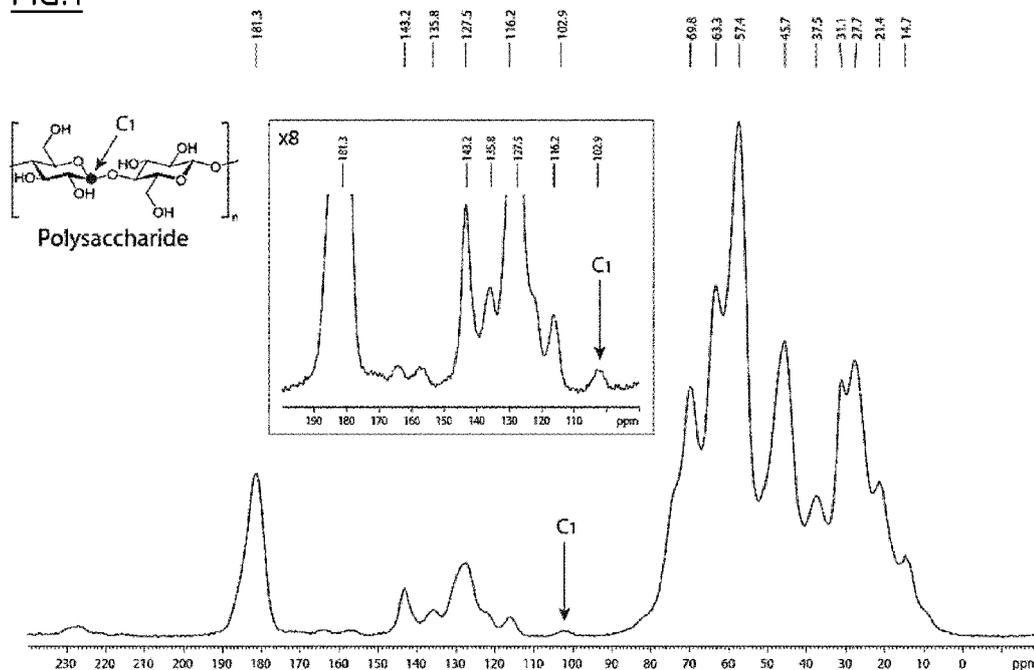
(74) Mandataire : **HABASQUE, Etienne** et al. ; LAVOIX, 2, Place d'Estienne d'Orves, 75441 PARIS CEDEX 09 (FR).

(81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection nationale disponible) : AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ,

(54) Title: METHOD FOR DETECTING AND QUANTIFYING POLYSACCHARIDES IN A PETROLEUM MATRIX OR AQUEOUS LUBRICANT COMPOSITION

(54) Titre : MÉTHODE DE DÉTECTION ET DE QUANTIFICATION DE POLYSACCHARIDES DANS UNE MATRICE PÉTROLIÈRE OU COMPOSITION LUBRIFIANTE AQUEUSE

FIG.1



(57) Abstract: The present application relates to a method for detecting and quantifying at least one polysaccharide in an aqueous lubricant composition or in a petroleum matrix comprising the following steps: a) performing an analysis by solid-phase nuclear magnetic resonance coupled with magic-angle, low-temperature, dynamic nuclear polarisation of said aqueous lubricating composition or petroleum matrix; b) checking for the presence of one (or more) peaks(s) with a chemical shift between 90 ppm and 110 ppm, preferably 103 ppm corresponding to the anomeric carbon atom of the osidic ring of the polysaccharide.

(57) Abrégé : La présente demande concerne une méthode de détection et de quantification d'au moins un polysaccharide dans une

WO 2022/069625 A1

OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) **États désignés** (*sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible*) : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasién (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), européen (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Publiée:

— avec rapport de recherche internationale (Art. 21(3))

composition lubrifiante aqueuse ou dans une matrice pétrolière comprenant les étapes suivantes : a) l'analyse par résonance magnétique nucléaire en phase solide couplée à la polarisation dynamique nucléaire à basse température et à l'angle magique de ladite composition lubrifiante aqueuse ou matrice pétrolière; b) la vérification de la présence d'un (ou de plusieurs) pic(s) à un déplacement chimique compris entre 90 ppm et 110 ppm, de préférence 103 ppm correspondant à l'atome de carbone anomérique du cycle osidique du polysaccharide.

**Méthode de détection et de quantification de polysaccharides dans une matrice
pétrolière ou composition lubrifiante aqueuse**

La présente invention concerne une méthode de détection de la présence d'au moins un polysaccharide dans une matrice pétrolière ou une composition lubrifiante aqueuse. La présente invention concerne l'utilisation de la résonance magnétique nucléaire en phase solide couplée à la polarisation dynamique nucléaire à basse température et à l'angle magique (technique dénommée plus simplement par « RMN DNP » dans la suite de ce document) pour identifier et quantifier la présence d'au moins un polysaccharide dans les matrices pétrolières ou les compositions lubrifiantes aqueuses.

Il est connu d'utiliser, dans les matrices pétrolières, notamment les compositions lubrifiantes, des additifs de type polysaccharide. L'ajout de polysaccharides est notamment connu dans les hydrolubes (compositions lubrifiantes comprenant majoritairement de l'eau ou composition lubrifiante aqueuse dans la suite de la description de l'invention). Ces polysaccharides présentent des hauts poids moléculaires et sont additionnés en très faible quantité dans les matrices pétrolières.

Il peut être intéressant de pouvoir analyser les matrices pétrolières et les compositions lubrifiantes aqueuses pour déterminer la présence éventuelle de polysaccharides et d'en déterminer la teneur, par exemple pour déterminer la qualité du processus de préparation desdites matrices pétrolières ou compositions lubrifiantes aqueuses notamment en cas de réclamation client sur les propriétés des matrices pétrolières ou compositions lubrifiantes aqueuses.

Cependant, du fait des faibles quantités utilisées, la détection de ces polysaccharides dans les matrices pétrolières ou compositions lubrifiantes aqueuses par les techniques d'analyse classiques n'est pas aisée et requiert un temps d'analyse important.

Il y a donc un intérêt à fournir une méthode d'analyse permettant de détecter la présence de polysaccharides dans une matrice pétrolière ou une composition lubrifiante aqueuse et de les quantifier.

Un objectif de la présente invention est donc de fournir une méthode permettant de détecter la présence de polysaccharides dans une matrice pétrolière ou une composition lubrifiante aqueuse.

5 Un autre objectif de la présente invention est également de fournir une telle méthode permettant de quantifier les polysaccharides présents dans ladite matrice pétrolière ou composition lubrifiante aqueuse.

D'autres objectifs encore apparaîtront à la lecture de la description de l'invention qui suit.

10

Ces objectifs sont remplis par la présente invention qui concerne une méthode de détection de la présence d'au moins un polysaccharide dans une composition lubrifiante aqueuse ou une matrice pétrolière, comprenant les étapes suivantes :

15 a) l'analyse par RMN DNP en phase solide de ladite composition lubrifiante aqueuse ou matrice pétrolière ;

b) la vérification de la présence d'un (ou de plusieurs) pic(s) à un déplacement chimique compris entre 90 ppm et 105 ppm, de préférence 103 ppm, correspondant à l'atome de carbone anomérique du cycle osidique du polysaccharide.

20 De façon particulièrement avantageuse, la méthode selon l'invention permet de s'abstenir de tout traitement préalable de la matrice pétrolière ou de la composition lubrifiante aqueuse. Ainsi, un échantillon de matrice pétrolière ou de composition lubrifiante aqueuse peut être analysé directement (moyennant l'ajout d'un agent de polarisation, voir plus avant).

25

Dans le cadre de la présente invention on entend par matrice pétrolière des compositions comprenant un mélange d'hydrocarbures et éventuellement de l'eau. On peut notamment citer le pétrole brut, les huiles de base (notamment celles utilisées dans les compositions lubrifiantes), les compositions lubrifiantes (notamment huile entière (une
30 huile entière est de préférence une composition comprenant une huile de base et des additifs de performance par exemple choisis parmi les détergents par exemple dérivés phosphorés, sulfonate ou autre détergent, Oléfines soufrées) ou composition lubrifiante sous forme d'émulsion, ou encore les bitumes. Les matrices pétrolières comprenant de l'eau sont des émulsions et sont notamment choisies parmi les compositions lubrifiantes
35 sous forme d'émulsions. Les compositions lubrifiantes sous forme d'émulsion

comprennent de préférence de l'eau, une huile de base de type huile minérale ou ester, additifs tensioactifs (par exemple dérivés éthoxylés tel que alcools gras ethoxylés/propoxylés, ester phosphorique ethoxylés/propoxylés), des additifs notamment choisis parmi les biocides, les anti-mousses, etc.

5 Dans le cadre de la présente invention, on entend par composition lubrifiante aqueuse, des compositions lubrifiantes comprenant de l'eau, au moins un polymère hydrosoluble notamment de type ethoxylé/propoxylé (ester, polyalkylène glycol, etc), des additifs de type organique (acide carboxyliques, amine), et des additifs de type biocide, etc. Les compositions lubrifiantes aqueuses de la présente invention sont de préférence
10 destinées à la lubrification dans le domaine des moteurs, notamment moteurs marins ou moteurs automobiles. Ces compositions lubrifiantes aqueuses sont connues sous la dénomination d'hydrolube.

De préférence, la méthode de l'invention est mise en œuvre sur des compositions lubrifiantes aqueuses.

15 Dans le cadre de la présente invention, on entend par polysaccharides, des polymères constitués de plusieurs oses liés entre eux par des liaisons osidiques. De manière plus préférée, les polysaccharides visés par l'invention sont les celluloses et les galactomannanes, de préférence guar, ainsi que leurs dérivés.

20 L'objectif de la présente invention est de détecter par RMN DNP la présence d'un pic à un déplacement chimique compris entre 90 ppm et 110 ppm, de préférence 103 ppm correspondant à l'atome de carbone anomérique du cycle osidique du polysaccharide.

De préférence, les polysaccharides visés par l'invention ont une masse molaire comprise entre 10 et 2000 kg/mol, de préférence comprise entre 100 et 1000 kg/mol.

25 La méthode de l'invention peut également comprendre une étape de quantification des polysaccharides par comparaison de l'intensité du pic de l'étape b) susmentionnée à celle du pic équivalent (on entend par pic équivalent un pic caractérisé par un déplacement chimique similaire) du spectre RMN DNP d'une composition, de préférence analogue, comprenant une quantité connue d'un polysaccharide donné.

30 Lors de l'étape a) un agent de transfert de polarisation est ajouté à la matrice pétrolière ou à la composition lubrifiante aqueuse.

De préférence, cet agent de transfert de polarisation est choisi parmi toute espèce paramagnétique chimiquement compatible et disposant d'une efficacité DNP (c'est-à-dire une capacité à agir comme agent de polarisation DNP). De préférence, l'agent de
35 transfert de polarisation est choisi parmi la famille des nitroxydes (incluant, par exemple

mais sans limitation, les bisnitroxydes), des trityls, ou de leurs dérivés, de préférence les nitroxydes.

De préférence, l'agent de transfert de polarisation est ajouté dans une quantité comprise entre 1 mM et 100 mM, de préférence entre 5 mM et 20 mM, par exemple 15 mM.

L'étape de polarisation nucléaire dynamique peut être mise en œuvre avec tout matériel connu de l'homme du métier, notamment à l'aide d'un gyrotron couplé à l'appareillage de RMN.

De préférence, l'étape de polarisation nucléaire dynamique de la matrice pétrolière est mise à une température comprise entre 20 K et 200 K, de préférence entre 90 et 120 K, par exemple 110 K.

De préférence, le rotor du système de polarisation nucléaire dynamique tourne à une fréquence comprise entre 1 kHz et 100 kHz, de préférence entre 1 et 50 kHz, par exemple 10 kHz.

De préférence, l'irradiation pour le transfert de la polarisation dans l'étape de polarisation nucléaire dynamique est comprise entre 100 GHz et 700 GHz, de préférence entre 200 et 500 GHz, par exemple 263 GHz.

De façon générale, la RMN-DNP est réalisée à l'angle magique et à basse température notamment à une température comprise 20 K et 200 K, de préférence entre 90 et 120 K, par exemple 110 K.

La polarisation peut être une polarisation croisée (ou cross polarization CP en anglais) ou une polarisation directe (DP). La CP permet une sensibilité et une rapidité de mesure plus importante, la DP est un peu moins sensible et nécessite donc des temps d'analyses plus importants.

La présente demande va maintenant être décrite à l'aide d'exemples non limitatifs.

[Fig 1] La figure 1 représente le spectre RMN d'une composition lubrifiante comprenant de l'eau et un polysaccharide obtenu par RMN DNP.

[Fig 2] La figure 2 représente deux spectres RMN DNP de deux compositions lubrifiantes comprenant de l'eau, l'une comprenant en outre un polysaccharide. Ces résultats montrent clairement qu'il est possible de détecter la présence de

polysaccharides (présence d'un signal vers 103 ppm lié au carbone anomérique de la cellulose) et donc de discriminer les deux compositions étudiées.

Exemple 1 : utilisation de l'agent de polarisation AMUPol dans une composition lubrifiante aqueuse

Dans 50 μ L d'une composition comprenant de l'eau et un polysaccharide, on solubilise 0,36 mg d'AMUPol® (un agent de polarisation DNP commercial disponible auprès de la société CortecNet). La solution ainsi obtenue est placée dans un rotor en saphir de 3,2 mm de diamètre externe à la température de 110 K sous une rotation de 10 kHz, et la fréquence de l'irradiation microonde du gyrotron est réglée à 263 GHz pour transférer la polarisation des radicaux de l'agent de polarisation aux noyaux ^1H de l'échantillon étudié. Cette polarisation est ensuite immédiatement transférée aux noyaux ^{13}C de ce même échantillon par polarisation croisée selon l'expérience RMN appelée « CPMAS ». L'analyse RMN est réalisée sur un spectromètre RMN 400 MHz à diamètre d'introduction large (ou wide bore en anglais) pendant une durée de 50 min. Le résultat est montré en figure 1 et permet la détection d'un pic à environ 103 ppm correspondant aux polysaccharides.

Exemple 2 : Méthode de discrimination entre deux compositions

Dans 50 μ L d'une composition (A) comprenant de l'eau et un polysaccharide, on solubilise 0,36 mg d'AMUPol® (un agent de polarisation DNP commercial disponible auprès de la société CortecNet). La solution ainsi obtenue est placée dans un rotor en saphir de 3,2 mm de diamètre externe à la température de 110 K sous une rotation de 10 kHz, et la fréquence de l'irradiation microonde du gyrotron est réglée à 263 GHz pour transférer la polarisation des radicaux de l'agent de polarisation aux noyaux ^1H de l'échantillon étudié. Cette polarisation est ensuite immédiatement transférée aux noyaux ^{13}C de ce même échantillon par polarisation croisée selon l'expérience RMN appelée « CPMAS » (le même essai pourrait être réalisé en polarisation directe (DPMAS)). L'analyse RMN est réalisée sur un spectromètre RMN 400 MHz à diamètre d'introduction large (ou wide bore en anglais) pendant une durée de 50 min. On réalise ensuite exactement la même analyse, avec les mêmes conditions expérimentales, sur une composition lubrifiante commerciale (B) comprenant également de l'eau. Les deux spectres RMN DNP ainsi obtenus sont montrés et comparés en figure 2. Un pic à 103 ppm, correspondant aux polysaccharides, est détecté pour la composition (A) comprenant de l'eau et un

polysaccharide. Un tel pic n'est pas détecté pour la composition lubrifiante (B). L'analyse menée permet de montrer que la composition (B) ne contient pas de polysaccharide.

Exemple 3 : utilisation de l'agent de polarisation TEKPol dans une matrice pétrolière

Dans 50 μ L d'une huile de base comprenant un polysaccharide, on solubilise 0,40 mg de TEKPol® (un agent de polarisation DNP commercial disponible auprès de la société CortecNet). La solution ainsi obtenue est placée dans un rotor en saphir de 3,2 mm de diamètre externe à la température de 110 K sous une rotation de 10 kHz, et la fréquence de l'irradiation microonde du gyrotron est réglée à 263 GHz pour transférer la polarisation des radicaux de l'agent de polarisation aux noyaux ^1H de l'échantillon étudié. Cette polarisation est ensuite immédiatement transférée aux noyaux ^{13}C de ce même échantillon par polarisation croisée selon l'expérience RMN appelée « CPMAS » (le même essai pourrait être réalisé en polarisation directe (DPMAS)). L'analyse RMN est réalisée sur un spectromètre RMN 400 MHz à diamètre d'introduction large (ou wide bore en anglais) pendant une durée de 50 min.

Le résultat obtenu permet la détection d'un pic à environ 103 ppm correspondant aux polysaccharides.

REVENDICATIONS

1. Méthode de détection de la présence d'au moins un polysaccharide dans une composition lubrifiante aqueuse ou une matrice pétrolière, comprenant les étapes suivantes :

a) l'analyse RMN couplée à la polarisation nucléaire dynamique en phase solide de ladite composition lubrifiante aqueuse ou matrice pétrolière ;

b) la vérification de la présence d'un pic à un déplacement chimique compris entre 90 ppm et 110 ppm, de préférence 103 ppm correspondant à l'atome de carbone anomérique du cycle osidique du polysaccharide.

2. Méthode selon la revendication 1, comprenant une étape de quantification des polysaccharides par comparaison de l'intensité du pic de l'étape b) à celle du pic équivalent obtenue par analyse RMN couplée à la polarisation nucléaire dynamique en phase solide d'une composition comprenant une quantité connue de polysaccharide.

3. Méthode selon la revendication 1 ou 2, dans laquelle, avant l'étape a) un agent de transfert de polarisation DNP est ajouté à la composition lubrifiante aqueuse ou à la matrice pétrolière.

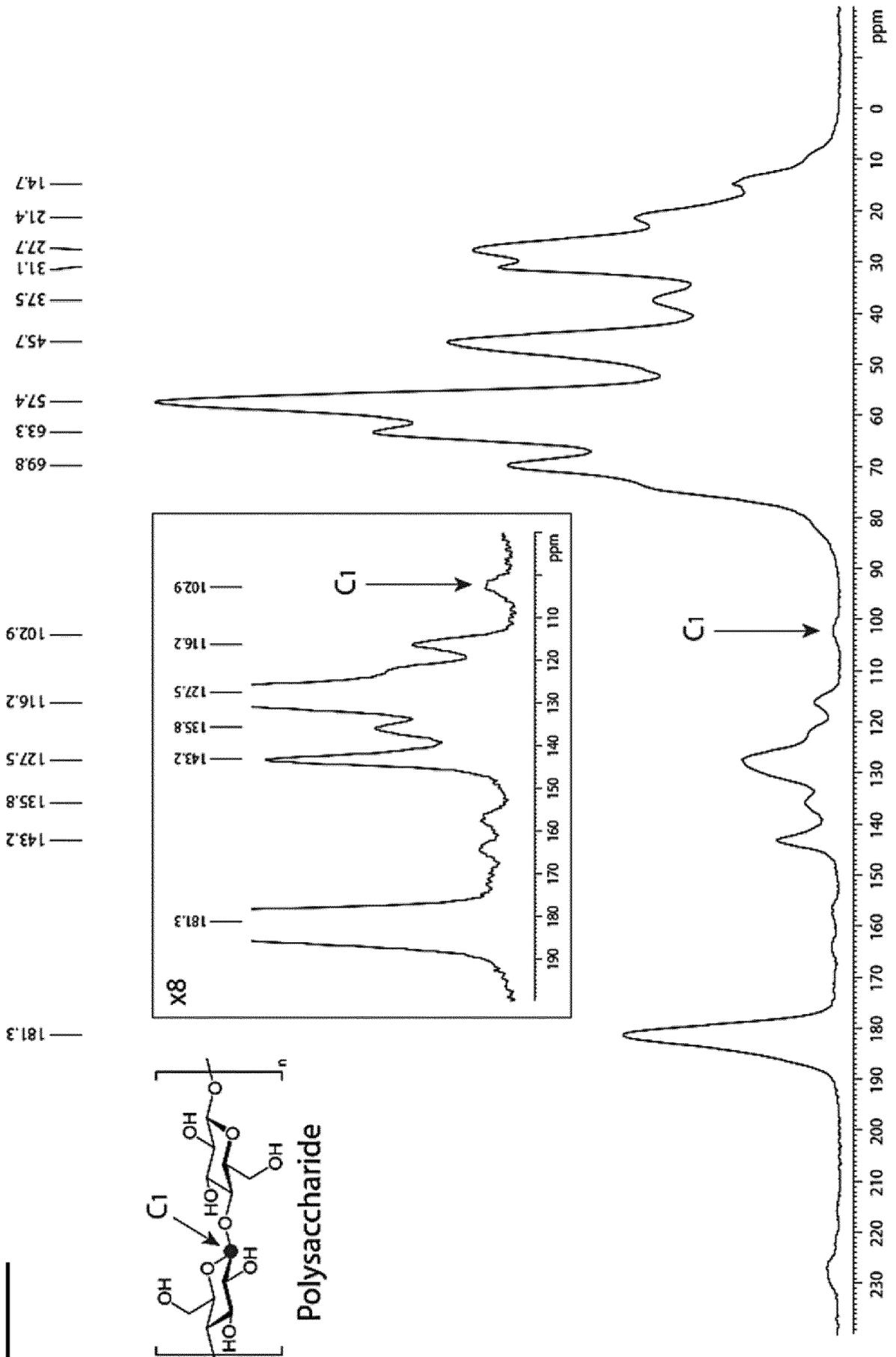
4. Méthode selon la revendication 3, dans laquelle l'agent de transfert de polarisation est choisi parmi la famille des nitroxydes, des trityls, ou de leurs dérivés.

5. Méthode selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, dans laquelle dans l'étape de polarisation nucléaire dynamique la matrice pétrolière est mise à une température comprise entre 20 K et 200 K.

6. Méthode selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans laquelle le rotor du système de polarisation nucléaire dynamique tourne à une fréquence comprise entre 1 kHz et 100 kHz.

7. Méthode selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, dans laquelle l'irradiation pour le transfert de la polarisation dans l'étape de polarisation nucléaire dynamique est comprise entre 100 GHz et 700 GHz.

FIG.1



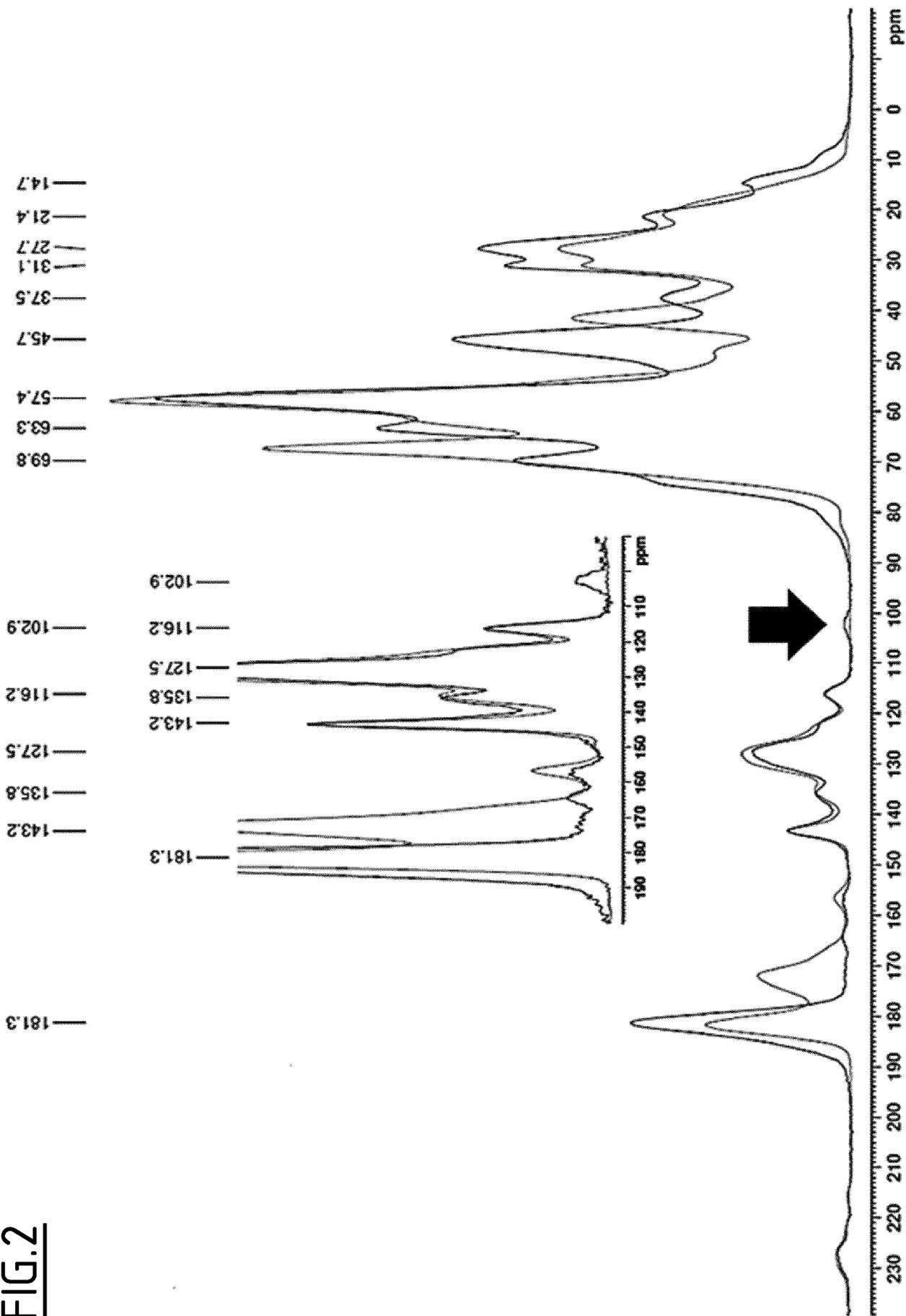


FIG. 2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2021/076938

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
G01R 33/56 (2006.01)i; G01N 24/08 (2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) G01R; G01N		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	HAMMOND T E ET AL. "High resolution solid state ¹³ C n.m.r. of Canadian peats" <i>FUEL, IPC SIENCE AND TECHNOLOGY PRESS, GUILDFORD, GB</i> , Vol. 64, No. 12, 01 December 1985 (1985-12-01), pages 1687-1695, [retrieved on 1985-12-01] DOI: 10.1016/0016-2361(85)90395-3 ISSN: 0016-2361, XP025455931 the whole document	1-7
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&" document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 10 December 2021		Date of mailing of the international search report 23 December 2021
Name and mailing address of the ISA/EP European Patent Office p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk Netherlands Telephone No. (+31-70)340-2040 Facsimile No. (+31-70)340-3016		Authorized officer Raguin, Guy Telephone No.

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/EP2021/076938

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE INV. G01R33/56 G01N24/08 ADD.		
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB		
B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE		
Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) G01R G01N		
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche		
Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		
Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	HAMMOND T E ET AL: "High resolution solid state 13C n.m.r. of Canadian peats", FUEL, IPC SIENCE AND TECHNOLOGY PRESS , GUILDFORD, GB, vol. 64, no. 12, 1 décembre 1985 (1985-12-01), pages 1687-1695, XP025455931, ISSN: 0016-2361, DOI: 10.1016/0016-2361(85)90395-3 [extrait le 1985-12-01] le document en entier <div style="text-align: center;">-----</div>	1-7
<input type="checkbox"/> Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents <input type="checkbox"/> Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe		
* Catégories spéciales de documents cités:		
"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent	"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention	
"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date	"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément	
"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)	"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier	
"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens	"&" document qui fait partie de la même famille de brevets	
"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée		
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée	Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale	
10 décembre 2021	23/12/2021	
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale	Fonctionnaire autorisé	
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Raguin, Guy	