

12

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

22 Date de dépôt : 01.12.14.

30 Priorité :

43 Date de mise à la disposition du public de la  
demande : 03.06.16 Bulletin 16/22.

56 Liste des documents cités dans le rapport de  
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du  
présent fascicule*

60 Références à d'autres documents nationaux  
apparentés :

○ Demande(s) d'extension :

71 Demandeur(s) : PEUGEOT CITROEN AUTOMO-  
BILES SA Société anonyme — FR et PEUGEOT-  
CITROEN DO BRASIL AUTOMOVEIS LTDA Société à  
responsabilité limitée — BR.

72 Inventeur(s) : AIROLDI MARCELO, NOHRA CHAAR  
DE SOUZA RENATA, TURKOVICS FRANCK, DIAS  
FLAVIO, LEAL BRAGA SERGIO, PRADELLE FLO-  
RIAN ALAIN YANNICK et FONSECA DE AGUIAR  
MARTINS ANA ROSA.

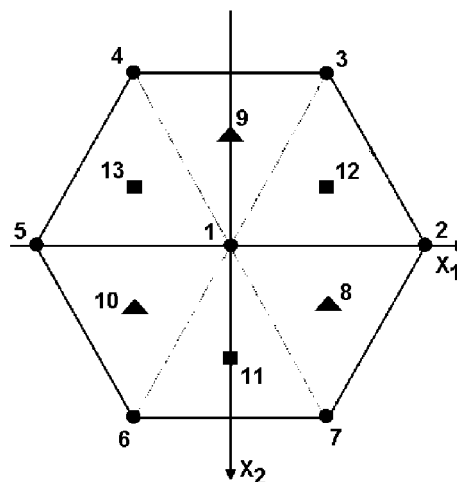
73 Titulaire(s) : PEUGEOT CITROEN AUTOMOBILES  
SA Société anonyme, PEUGEOT-CITROEN DO BRA-  
SIL AUTOMOVEIS LTDA Société à responsabilité limi-  
tée.

74 Mandataire(s) : PEUGEOT CITROEN AUTOMO-  
BILES SA Société anonyme.

54 PROCÉDE DE DETERMINATION D'UN MODELE ANALYTIQUE DE FORMATION DE GOMME DANS UN  
MELANGE ESSENCE / ALCOOL.

57 L'invention concerne un procédé de détermination  
d'un modèle analytique de formation de gomme dans un  
mélange d'essence et d'alcool, caractérisé en ce qu'il com-  
prend les étapes suivantes :

- Préparation d'un nombre déterminé échantillons de mé-  
lange essence/ alcool,
- Mise en température des échantillons préparés,
- Vieillessement pendant une durée déterminée des  
échantillons préparés et mis en température,
- les étapes précitées ayant été déterminées selon un  
plan d'expérience définissant le nombre d'échantillons et  
comprenant comme variables la proportion en alcool (X1), la  
température et la durée de vieillessement (X2) de chaque  
échantillon de mélange essence/alcool,
- suite au vieillessement des échantillons :
- Mesure de la teneur en gomme formée dans les échan-  
tillons,
- Détermination du modèle analytique établissant la te-  
neur en gomme formée en fonction de ces variables (X1,  
X2), à l'aide des mesures de teneur en gomme et des va-  
leurs associées de ces variables (X1, X2) déterminées se-  
lon le plan d'expérience.



## PROCEDE DE DETERMINATION D'UN MODELE ANALYTIQUE DE FORMATION DE GOMME DANS UN MELANGE ESSENCE / ALCOOL

### Domaine technique de l'invention

- 5 La présente invention se rapporte au domaine des carburants pour automobile.  
L'invention concerne plus particulièrement un procédé de détermination d'un modèle analytique de formation de gomme dans un mélange essence / alcool.

10 Pendant la période s'écoulant entre leur production et leur combustion dans le moteur, notamment pendant leurs périodes de stockage, par exemple, dans le réservoir du véhicule, les essences peuvent subir des altérations chimiques qui peuvent conduire in fine à des dysfonctionnements du moteur.

15 En effet, en présence d'oxygène, les hydrocarbures risquent de subir, même à température ambiante, un processus d'oxydation qui conduit à des produits visqueux, non-volatiles, insolubles, couramment appelés gommages. Ces gommages peuvent provoquer par exemple du colmatage d'injecteur, du collage de segment, etc.

20 On connaît de la norme ASTM D381 une méthode de détermination de la teneur en gomme d'un carburant dans laquelle on évapore une quantité déterminée de carburant sous des conditions contrôlées de flux d'air et de température et on pèse le résidu obtenu.

25 On connaît encore de la norme ASTM D873 une autre méthode de détermination de la teneur en gomme d'un carburant dans laquelle le carburant est oxydé sous des conditions contrôlées de pression et dans une enceinte remplie d'oxygène. La gomme formée est ensuite pesée.

30 Ces méthodes sont des méthodes de vieillissement accélérés qui ne sont pas totalement représentatives d'un vieillissement normal.

De plus sur certains marchés automobiles, le mélange carburé contenu dans le réservoir du véhicule peut être la résultante de mélanges d'essence et d'alcool de proportions très variables et tester toutes les combinaisons de mélange possibles par les méthodes précitées est fastidieux.

35 L'invention a pour objectif de s'affranchir des inconvénients de l'art antérieur en proposant une solution qui permet de déterminer la tendance d'un mélange de carburant à former

des gomme, dans des conditions de vieillissement plus représentatives que l'art antérieur, avec un nombre d'essais raisonnable.

Pour atteindre cet objectif, il est prévu selon l'invention un procédé de détermination d'un modèle analytique de formation de gomme dans un mélange d'essence et d'alcool, caractérisé en ce qu'il comprend les étapes suivantes :

- Préparation d'un nombre déterminé échantillons de mélange essence/ alcool,
- Mise en température des échantillons préparés,
- Vieillissement pendant une durée déterminée des échantillons préparés et mis en température,

les étapes précitées ayant été déterminées selon un plan d'expérience définissant le nombre d'échantillons et comprenant comme variables la proportion en alcool, la température et la durée de vieillissement de chaque échantillon de mélange essence/alcool,

le procédé comprenant encore, suite au vieillissement des échantillons, les étapes de :

- Mesure de la teneur en gomme formée dans les échantillons,
- Détermination du modèle analytique établissant la teneur en gomme formée en fonction de ces variables, à l'aide des mesures de teneur en gomme et des valeurs associées de ces variables déterminées selon le plan d'expérience.

De préférence, le modèle est un modèle polynomial de second ordre.

Dans une variante, le plan d'expérience comprend une matrice de Doehlert.

De préférence, la matrice de Doehlert comprend seulement ces trois variables.

Dans une variante, la température des échantillons est comprise entre 20 et 40°C et/ou la durée de vieillissement des échantillons est comprise entre 0 et 150 jours et/ou la teneur en alcool des échantillons est comprise entre 0 et 100%.

Dans une variante, une expérience du plan d'expérience est réalisée au moins une seconde fois pour vérifier la répétabilité et l'incertitude expérimentale.

De préférence, l'expérience du plan réalisée au moins une seconde fois est le point central du plan d'expérience.

En variante, l'essence comprend une fraction d'éthanol anhydre et l'alcool à mélanger est de l'éthanol hydraté.

5 En variante encore, après leur vieillissement, on détermine aussi la période d'induction des échantillons.

### Brève description des dessins

10 D'autres particularités et avantages apparaîtront à la lecture de la description ci-après d'un mode particulier de réalisation, non limitatif de l'invention, faite en référence aux figures dans lesquelles :

- La figure 1 est un tableau de synthèse des points d'essais réalisés par la matrice de Doehlert.
- 15 - Les figures 2a et 2b sont des représentations géométriques respectivement en perspective et selon une projection dans le plan  $X_1$ ,  $X_2$  des points d'essais de la matrice de Doehlert.

### 20 Description détaillée

Cette description présente un protocole pour étudier la formation de gomme dans un mélange entre une essence et un alcool pour moteur à combustion interne.

25 Dans cet exemple, l'essence est un carburant de type E20, c'est-à-dire avec 20% en volume d'éthanol anhydre.

Dans cet exemple toujours, l'alcool est de l'éthanol dit hydraté car il peut contenir une fraction d'eau. L'éthanol hydraté est à différencier de l'éthanol anhydre utilisé lors de l'obtention de l'E20.

30 Conformément à l'invention, on réalise un plan d'expérience, du type Doehlert dans cet exemple. D'autres types de plan d'expérience pourrait être envisagé, cependant, un des avantages importants à choisir des plans de Doehlert est de permettre une démarche séquentielle dans l'étude d'une surface de réponse (paramètre évalué). Par exemple, si la zone expérimentale la plus intéressante ne se trouve pas dans le domaine préalablement  
35 choisi mais plutôt située au voisinage de celui-ci ; il est possible de construire autour de l'un des points du plan initial, un nouvel ensemble d'expériences, encore désigné

simplexe, qui comprend une partie des essais déjà effectués sans pour autant détruire l'uniformité préexistante. Chaque simplexe étant déductible du simplexe de dimension immédiatement inférieure, il est facile d'augmenter le nombre de facteurs progressivement sans pour autant recommencer toutes les expériences lorsque l'on s'aperçoit que le domaine d'exploration ne convient pas.

Afin de limiter le nombre d'expérience et en faisant l'hypothèse que les termes d'ordre supérieur à deux sont négligeables, le plan d'expérience choisi est de second ordre avec seulement trois variables.

On a alors le modèle empirique analytique polynomial de second ordre suivant :

$$Y = b_0 + b_1X_1 + b_2X_2 + b_3X_3 + b_{11}X_1^2 + b_{22}X_2^2 + b_{33}X_3^2 + b_{12}X_1X_2 + b_{13}X_1X_3 + b_{23}X_2X_3$$

Dans lequel Y représente la teneur en gomme, qui peut être exprimée par exemple en g/litre de mélange.

$X_1$ ,  $X_2$ ,  $X_3$  représentent les trois variables détaillées plus bas et  $b_0$ ,  $b_1$ ,  $b_2$ ,  $b_3$ ,  $b_{11}$ ,  $b_{22}$ ,  $b_{33}$ ,  $b_{12}$ ,  $b_{13}$ ,  $b_{23}$ , les coefficients qui seront à déterminer à l'aide des mesures Y de teneur en gomme et des valeurs des variables  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $X_3$  associées.

La première variable  $X_1$  est le pourcentage en volume d'éthanol hydraté ajouté au mélange essence / alcool. Ce pourcentage peut varier de 0% (autrement dit, le mélange ne contient que de l'essence E20) à 100% (autrement dit, le mélange ne contient que de l'éthanol hydraté). On prépare ainsi plusieurs échantillons de mélange essence E20 / éthanol hydraté dans lesquels la proportion d'éthanol hydraté est comprise entre 0 et 100%. Dans ce plan d'expérience la proportion d'éthanol hydraté dans le mélange varie par pas de 25%, nous avons donc 5 niveaux : 0, 25, 50, 75 et 100%.

La deuxième variable  $X_2$  est la durée de vieillissement. Cette durée déterminée de vieillissement correspond au temps pendant lequel l'échantillon de mélange essence E20 / éthanol hydraté sera laissé. Dans ce plan d'expérience, la durée de vieillissement maximum est fixée à 150 jours. Cette durée maximum est choisie car elle est considérée comme assez longue et représentative de conditions réelles de stockage et assez courte pour être viable expérimentalement. Sept durées de vieillissement sont étudiées, de 0 jour (sans vieillissement) à 150 jours, par pas de 25 jours.

La troisième variable  $X_3$  est la température à laquelle est placé l'échantillon de mélange préparé. Cette température est représentative d'une température moyenne ambiante et peut varier de 20°C à 40°C. Dans ce plan d'expérience, la température varie par pas de 10°C. La température maximum de 40°C est choisie pour raison de sécurité afin d'éviter l'évaporation totale de l'échantillon.

La figure 1 présente les essais réalisés. Le plan d'expérience prévoit ainsi treize essais par la matrice de Doehlert. Les figures 2a et 2b sont des représentations graphiques de ces essais.

L'essai N°1 du tableau présentant le plan d'expérience est l'essai central du plan comme le montrent les figures 2a et 2b. Afin de vérifier la répétabilité et déterminer le degré d'incertitude expérimentale de la mesure, ce point central N°1 est réalisé encore au moins une fois. Une autre point peut servir pour vérifier la répétabilité et déterminer le degré d'incertitude expérimentale, mais le point central présente l'avantage d'être réalisé dans les conditions moyennes de l'expérience, on évite ainsi d'utiliser des conditions critiques.

En résumé, pour notre exemple, le procédé comprend, sur la base du plan d'expérience de la figure 1 définissant le nombre d'échantillons et comprenant comme variables la proportion en alcool, la température et la durée de vieillissement de chaque échantillon de mélange essence/alcool, les étapes de :

-Préparation des treize échantillons de mélange essence E20/ éthanol hydraté,

-Mise en température des échantillons de mélange préparés,

-Vieillissement pendant la durée déterminée des échantillons de mélange préparés et mis en température. Par vieillissement on entend que l'on laisse l'échantillon de mélange essence / alcool au repos pendant la durée déterminée.

Et ensuite, à la fin de la durée de vieillissement des échantillons de mélange :

-Mesure de leur teneur en gomme formée, par exemple en g/litre, la teneur est par exemple obtenue selon le protocole donnée par la norme ASTM D381.

-Détermination du modèle analytique établissant la teneur en gomme formée,  $Y$ , en fonction des variables  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $X_3$ , à l'aide des mesures de teneur en gomme des

échantillons et des valeurs associées de ces variables déterminées selon le plan d'expérience. Cette détermination passe par la détermination des coefficients  $b_0$ ,  $b_1$ ,  $b_2$ ,  $b_3$ ,  $b_{11}$ ,  $b_{22}$ ,  $b_{33}$ ,  $b_{12}$ ,  $b_{13}$ ,  $b_{23}$ , du modèle. Cette détermination des coefficients se fait par exemple par une méthode de résolution de système d'équation à plusieurs inconnues.

5

Grâce au procédé de l'invention, on peut ainsi déterminer l'influence de la proportion d'éthanol dans une essence déterminée sur la formation de gomme avec un modèle analytique prédictif établi avec un minimum de seulement 14 essais, ce qui en fait un protocole économique. On alors connaitre les conditions critiques pour lesquelles le  
10 mélange de carburant ne correspond plus aux spécifications requises pour son usage dans un moteur thermique.

L'invention ne se limite pas au mode de réalisation décrit. Le procédé peut convenir pour déterminer l'influence de la proportion d'éthanol hydraté en mélange dans une essence  
15 déterminée sur la formation de gomme pour des essences autres que l'E20, tel par exemple l'E85, L'E5 c'est-à-dire avec une fraction d'éthanol anhydre autre que 20%.

Dans une autre variante, on peut prévoir de profiter de ce plan d'expérience pour déterminer sur les échantillons après vieillissement la période dite d'induction. La période  
20 d'induction est aussi classiquement utilisée comme une indication de la tendance d'une essence à former des gommages pendant le stockage.

Cette période d'induction est déterminée par exemple selon un protocole établi d'après la norme ISO 7536 ou ASTM D525. Dans les grandes lignes, ces protocoles consiste à  
25 disposer dans une enceinte du mélange de l'échantillon retiré, à remplir cette enceinte d'oxygène à environ 7 bars entre 15 et 25°C, à chauffer à environ 100°C. L'évolution de la pression d'oxygène est suivie en fonction du temps. Le temps correspondant à la première chute de pression, indicatrice d'un début d'oxydation, détermine la période d'induction de l'échantillon de mélange à la température du test. On peut ainsi évaluer  
30 cette période d'induction des échantillons est sensible ou non aux différents types d'exposition à la température et aux durées de vieillissement.

### Revendications

1. Procédé de détermination d'un modèle analytique de formation de gomme dans un mélange d'essence et d'alcool, caractérisé en ce qu'il comprend les étapes suivantes :

-Préparation d'un nombre déterminé échantillons de mélange essence/ alcool,

5 -Mise en température des échantillons préparés,

-Vieillissement pendant une durée déterminée des échantillons préparés et mis en température,

les étapes précitées ayant été déterminées selon un plan d'expérience définissant le nombre d'échantillons et comprenant comme variables la proportion en alcool ( $X_1$ ), la  
10 température ( $X_3$ ) et la durée de vieillissement ( $X_2$ ) de chaque échantillon de mélange essence/alcool,

le procédé comprenant encore, suite au vieillissement des échantillons, les étapes de :

-Mesure de la teneur en gomme formée dans les échantillons,

15 -Détermination du modèle analytique établissant la teneur en gomme formée en fonction de ces variables ( $X_1$ ,  $X_2$ ,  $X_3$ ), à l'aide des mesures de teneur en gomme et des valeurs associées de ces variables ( $X_1$ ,  $X_2$ ,  $X_3$ ) déterminées selon le plan d'expérience.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le modèle est un modèle  
20 polynomial de second ordre.

3. Procédé selon la revendication 1 ou la revendication 2, caractérisé en ce que le plan d'expérience comprend une matrice de Doehlert.

4. Procédé selon la revendication 3, caractérisé en ce que la matrice de Doehlert comprend seulement ces trois variables.

25 5. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que la température des échantillons est comprise entre 20 et 40°C et/ou la durée de vieillissement des échantillons est comprise entre 0 et 150 jours et/ou la teneur en alcool des échantillons est comprise entre 0 et 100%.

30 6. Procédé selon l'un quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'une expérience du plan d'expérience est réalisée au moins une seconde fois pour vérifier la répétabilité et l'incertitude expérimentale.



7. Procédé selon la revendication précédente, caractérisé en ce que l'expérience du plan réalisée au moins une seconde fois est le point central du plan d'expérience.

8. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'essence comprend une fraction d'éthanol anhydre et en ce que l'alcool à mélanger est de l'éthanol hydraté.

9. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'après leur vieillissement, on détermine aussi la période d'induction des échantillons.

N°	$X_1$	$X_2$	$X_3$
1	50	75	30
2	100	75	30
3	75	0	30
4	25	0	30
5	0	75	30
6	25	150	30
7	75	150	30
8	75	100	40
9	50	25	40
10	25	100	40
11	50	125	20
12	75	50	20
13	25	50	20

Figure 1

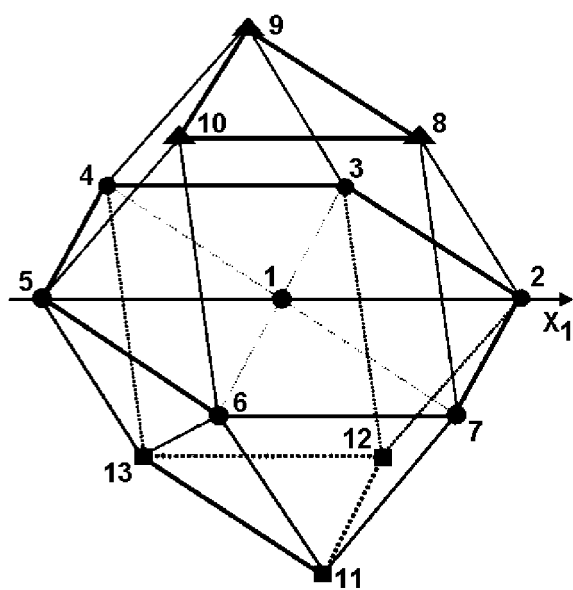


Figure 2a

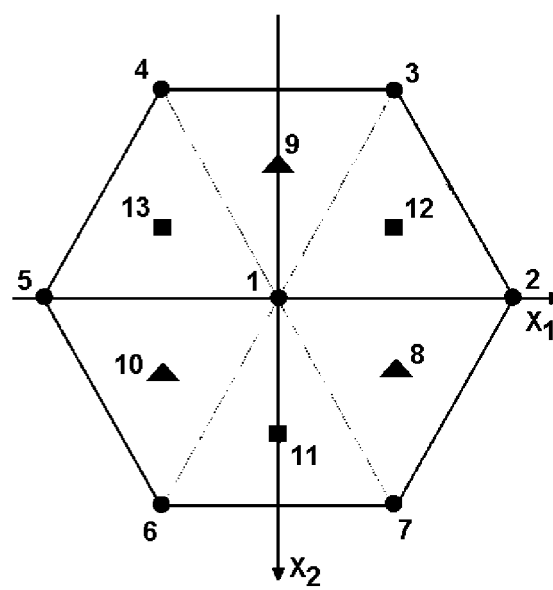


Figure 2b



# **RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement  
national

FA 804307  
FR 1461730

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X	TEIXEIRA L. S. G. ET AL: "The influence of Cu, Fe, Ni, Pb and Zn on gum formation in the Brazilian automotive gasoline", FUEL PROCESSING TECHNOLOGY, ELSEVIER BV, NL, vol. 88, no. 1, 29 décembre 2006 (2006-12-29), pages 73-76, XP005818435, ISSN: 0378-3820, DOI: 10.1016/J.FUPROC.2006.08.008 * abrégé * * page 73, colonne de gauche, ligne 11 - colonne de droite, ligne 17 * * page 74, colonne de gauche, lignes 26-32 * * page 75, colonne de gauche, lignes 7-14 *	1-9	G01N33/28
X	De Carvalho L. S. ET AL: "ESTUDO DO EFEITO DA ADIÇÃO DE ZINCO E NÍQUEL NAS CARACTERÍSTICAS FÍSICO-QUÍMICAS DA GASOLINA AUTOMOTIVA", 2005, pages 1-6, XP055204906, Extrait de l'Internet: URL: <a href="http://www.portalabpg.org.br/PDPetro/3/trabalhos/IBP0667_05.pdf">http://www.portalabpg.org.br/PDPetro/3/trabalhos/IBP0667_05.pdf</a> [extrait le 2015-07-27] * le document en entier *	1-9	DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC) G06F
Date d'achèvement de la recherche 29 juillet 2015		Examineur Godzina, Przemyslaw	
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant	



# **RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement  
national

FA 804307  
FR 1461730

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X	<p>DEJAEGER B. ET AL: "Experimental designs and their recent advances in set-up, data interpretation, and analytical applications", JOURNAL OF PHARMACEUTICAL AND BIOMEDICAL ANALYSIS, NEW YORK, NY, US, vol. 56, no. 2, 25 avril 2011 (2011-04-25) , pages 141-158, XP028098525, ISSN: 0731-7085, DOI: 10.1016/J.JPBA.2011.04.023 [extrait le 2011-05-06] * page 142, colonne de gauche, ligne 1 - page 143, colonne de gauche, ligne 15 * * page 143, colonne de gauche, lignes 40-56 * * alinéa [2.2.] * * page 146, colonne de droite, lignes 18-26 * * alinéa [3.2.] * * figures 1,5,12 *</p>	1-9	
A	<p>ASSIS J. C. R. ET AL: "Using the Doehlert matrix as a tool for studying the influence of gasoline components on octane numbers", FUEL, vol. 113, 10 juillet 2013 (2013-07-10), pages 744-749, XP028698655, ISSN: 0016-2361, DOI: 10.1016/J.FUEL.2013.06.047 * le document en entier *</p>	1-9	<p>DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC)</p>
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
29 juillet 2015		Godzina, Przemyslaw	
<p>CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons &amp; : membre de la même famille, document correspondant</p>			

1

EPO FORM 1503 12.99 (P04C14)



# **RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement  
national

FA 804307  
FR 1461730

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
A	WITEK-KROWIAK A. ET AL: "Application of response surface methodology and artificial neural network methods in modelling and optimization of biosorption process", BIORESOURCE TECHNOLOGY, vol. 160, 17 janvier 2014 (2014-01-17), pages 150-160, XP028659237, ISSN: 0960-8524, DOI: 10.1016/J.BIORTECH.2014.01.021 * figures 1,2 *	1-9	
A	WO 2013/164696 A1 (UNIV DALHOUSIE [CA]; DICKINSON VICTORIA) 7 novembre 2013 (2013-11-07) * alinéas [0067], [0068] * * tableau 1 *	1-9	
T	WALTERS E. L. ET AL: "Chemistry of Gum Formation in Cracked Gasoline", INDUSTRIAL & ENGINEERING CHEMISTRY, vol. 41, no. 8, 1 août 1949 (1949-08-01), pages 1723-1729, XP055204900, ISSN: 0019-7866, DOI: 10.1021/ie50476a048 * le document en entier *		DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC)
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
29 juillet 2015		Godzina, Przemyslaw	
<p><b>CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS</b></p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons ..... &amp; : membre de la même famille, document correspondant</p>			

