

A		B		C	X
---	--	---	--	---	---

N° de recours : T 0186/90 - 3.3.3
N° de la demande : 84 400 103.2
N° de la publication : 0 118 325
Classement : C08L 83/04
Titre de l'invention : Compositions organopolysiloxaniques contenant des polyacyloxysilanes et durcissant très rapidement en élastomères en présence d'accélérateur du type hydroxyde métallique

DECISION
du 17 janvier 1993

Demandeur : RHONE-POULENC CHIMIE
Opposante : Heidelberger Zement Aktiengesellschaft
WACKER-CHEMIE GmbH
Référence :
CBE : Art. 56
Mot clé : "L'activité inventive confirmée"



N^o. du recours : T 186/90 - 3.3.3

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.3
du 17 février 1993

Requérante : Heidelberg Zement Aktiengesellschaft
(Opposante 01) Berliner Straße 6

Mandataire : Patentanwälte
Zellentín & Partner
Rubenstraße 30
W - 6700 Ludwigshafen (DE)

Intimée : RHONE-POULENC CHIMIE
(Titulaire du brevet) 25, Quai Paul Doumer
F - 92408 Courbevoie Cédex (FR)

Mandataire : Seugnet Jean-Louis
RHONE-POULENC INTERSERVICES
Service Brevets Chimie
Centre de Recherche des Carrières
B.P. 62
F - 69192 Saint-Fons Cédex (FR)

Autre partie : WACKER-CHEMIE GmbH
(Opposante 02) Prinzregentenstraße 22
Postfach
W - 8000 München 22 (DE)

Décision attaquée : Décision intermédiaire de la division d'opposition de
l'Office européen des brevets du 17 janvier 1990
concernant le maintien du brevet européen n^o 0 118 325
dans une forme modifiée.

Composition de la Chambre :

Président : R.A. Lunzer
Membres : H.H.R. Fessel
M.K.S. Àuz Castro

Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet n° 84 400 103.2 déposée le 18 janvier 1984, pour laquelle a été revendiquée la priorité du 27 janvier 1983 fondée sur un dépôt antérieur en France (FR-8 301 504), a donné lieu le 5 novembre 1986 à la délivrance du brevet européen n° 0 118 325 sur la base de dix revendications.

La revendication 1 s'énonçait comme suit :

"1. Compositions organopolysiloxane comprenant au moins :
A - 100 parties de polymères principalement α - w di(hydroxy)diorganopolysiloxaniques, de viscosité 700 à 1 000 000 mPa.s à 25°C, constitués chacun d'une succession de motifs diorganosiloxy de formule R_2SiO dans laquelle les symboles R, identiques ou différents, représentent des radicaux hydrocarbonés ayant de 1 à 8 atomes de carbone, substitués ou non par des atomes d'halogènes, de groupes cyano.
B - 2 à 20 parties d'agents réticulants de formule générale $R_pSi(OCOR')_{4-p}$ dans laquelle le symbole R a la signification donnée sous (A), le symbole R', représente un radical hydrocarboné exempt d'insaturation aliphatique, ayant de 1 à 15 atomes de carbone et le symbole p représente zéro ou un.
C - 0 à 150 parties de charges minérales
D - 0,01 à 7 parties, pour 100 parties de A + B + C, d'accélérateurs de durcissement caractérisés en ce que les accélérateurs (D) sont choisis parmi les hydroxydes alcalins ou alcalino-terreux."

Les revendications 2 à 8 étaient des revendications dépendantes concernant des compositions particulières selon la revendication principale. Les revendications 9 et 10 portaient respectivement sur un procédé de

préparation et sur une utilisation des compositions telles que définies dans les revendications 1 à 8.

II. Le 29 juillet 1987 et le 4 août 1987 deux oppositions ont été formées à l'encontre du brevet tel que délivré pour défaut de nouveauté et d'activité inventive (article 100a) CBE). Les motifs d'opposition s'appuyaient en particulier sur les documents suivants :

- (1) : (1a) US-A-3 061 575,
(1b) Noll, Chemie und Technologie der Silicone, 2. Auflage 1968, pages 341/342,
- (3) : DE-A-1 569 949,
- (4) : Fachlexikon ABC Chemie, 1979, page 38,
- (5) : GB-A-1 308 985.

Dans la procédure de recours, la requérante a présenté les documents :

- (12) DE-C-2 408 408
- (13) DE-B-1 255 924

III. Par décision intermédiaire du 10 octobre 1989, signifiée le 17 janvier 1990, la division d'opposition a estimé que les motifs d'opposition ne s'opposaient pas au maintien du brevet sous forme modifiée. Pour l'essentiel, la modification apportée concernait la teneur minimale en composé D, qui était dorénavant 0,05 partie au lieu de 0,01 partie.

Selon la division d'opposition, aucun des documents produits par les opposantes ne permettait de mettre en cause la nouveauté des compositions, du procédé pour l'obtention des compositions et de leurs utilisations. En particulier, la composition était nouvelle même si l'on admettait que les hydroxydes des métaux alcalins n'étaient pas nouveaux vis-à-vis de l'ammonium hydroxyde, car ceux-ci étaient dispersés dans les compositions et

non pas mises en contact sous forme de solutions aqueuses (voir 3).

Par rapport au document (1a) considéré comme le document le plus proche le problème à résoudre pouvait être défini comme la mise à disposition contrôlée, possédant de bonnes propriétés mécaniques et permettant la neutralisation de l'acide formé par la rupture des liaisons ROCO-SI#.

L'addition de 0,05 à 0,7 partie d'hydroxyde alcalin ou alcalino-terreux au lieu d'oxyde de magnésium n'était pas suggérée par l'art antérieur, en particulier au vu de l'enseignement du document (1b) relatif à la neutralisation de l'acide formé.

IV. Le 15 mars 1990 la requérante (opposante 1) a formé un recours à l'encontre de cette décision, en acquittant simultanément la taxe prescrite et en exposant les motifs du recours dans un mémoire déposé le 25 mai 1990. Aussi bien dans ce mémoire que lors de la procédure orale qui a eu lieu le 17 février 1993, la requérante a fait valoir que la modification de la revendication 1 ne permettait pas d'aboutir à une conclusion positive en ce qui concernait l'activité inventive.

i) Le document (1b) divulguait l'influence de l'oxyde de magnésium sur l'absorption d'acide acétique, qui représentaient un des facteurs essentiels lors de la vulcanisation de caoutchoucs silicone monocomposante. Cela permettait d'obtenir des durées de durcissement raisonnables, même pour des couches relativement épaisses. Compte-tenu du mécanisme réactionnel, le remplacement de l'oxyde par l'hydroxyde de magnésium en vue d'accélérer la réticulation était évident pour l'homme du métier en raison de la teneur en eau supérieure de l'hydroxyde.

- ii) Ce remplacement était également évident en vue d'accélérer la réticulation de couches épaisses à partir de la connaissance de ce mécanisme réactionnel et de l'enseignement du document (1b) en combinaison avec le document (1a). La prise en compte de l'enseignement du document (3) en combinaison avec le document (4) conduisait à une conclusion identique. De même, le document (13) signalait la possibilité d'ajouter des composés hydroxylés et le document (12) précisait le rôle catalytique joué par l'hydroxyde de calcium lors de la condensation de polysiloxane diols. Il était donc légitime au vu de l'enseignement du document (1b) d'attendre de l'hydroxyde de calcium un effet accélérateur de la vulcanisation de caoutchoucs silicone en couches épaisses.
- iii) Pour l'homme du métier, l'enseignement du document (5), selon lequel l'eau pouvait être ajoutée sous une forme quelconque, signifiait que le silicate d'aluminium utilisé comme agent d'absorption possédait les propriétés basiques nécessaires à la neutralisation de l'acide formé. Au vu du document (1a), il était donc évident de modifier l'agent de neutralisation, en l'espèce l'oxyde de magnésium, de manière à ce qu'il assurât simultanément une action hydratant. La mise en oeuvre de l'agent de neutralisation sous forme de son hydroxyde s'imposait par conséquent.

- V. Pour sa part, l'opposante 2 n'a plus formé de recours, ni présenté d'arguments. Après avoir été, cependant, en tant que partie à la procédure, dûment citée, elle a informé la Chambre qu'elle n'entendait pas participer à la procédure orale.
- VI. Les arguments présentés par l'intimée peuvent se résumer comme suit :

Le document (1b) lu en combinaison avec le document (1a) n'indiquait pas explicitement que l'oxyde de magnésium accélérât la prise de la composition élastomère. Cette information ne pouvait se déduire que des exemples en tenant compte de l'épaisseur des échantillons (exemples 1 et 2, 12,5 mm). En plus, selon (1a) colonne 2, ligne 63 à colonne 3, ligne 4, la vitesse de réticulation diminuait avec l'accroissement de la quantité d'oxyde de magnésium. Comme la titulaire l'a démontré, Noll (1b) s'était trompé quand il affirmait que magnésium oxyde était un "Säurebinder".

En répétant les exemples 1 et 2 de (1a), l'homme du métier aurait constaté que l'oxyde de magnésium n'accélérait que très peu la prise et ne neutralisait pas l'acide formé lors de la réticulation. Même la lecture de (3) à la lumière de l'enseignement du document (4) n'aurait pas incité l'homme du métier à utiliser une base plus forte, car il ressortait de (3) que l'hydroxyde d'ammonium était appliqué à la surface de la composition sous forme de solution aqueuse. De plus, il était bien connu qu'il n'était pas possible de répartir correctement de l'eau ou une solution aqueuse à l'intérieur de la matrice hydrophobe du polymère.

Dans le document (1a) il n'était ni décrit, ni suggéré que l'oxyde de magnésium avait un effet accélérateur permettant le durcissement en moins de trois heures.

Dans le brevet attaqué, (voir par exemple page 1, lignes 14 à 24) le document (5) a été mentionné comme non pertinent. En effet, le problème à résoudre vis-à-vis de cet enseignement serait donc de trouver des élastomères ayant des propriétés mécaniques identiques à celles des élastomères issus des compositions monocomposantes connues, donc formées par simple mélange des constituants A, B et C. La durée de réticulation pour arriver à des élastomères possédant les caractéristiques désirées (voir page 8, lignes 1 à 10 du brevet attaqué) devait être généralement de quelques minutes à 60 minutes, mais jamais au-delà de 3 heures. Ce problème était résolu par réaction en chaîne et par la neutralisation de l'acide avec les bases citées dans la revendication 1. Aucun des documents ne suggérait cette solution.

VII. La requérante conclut à l'annulation de la décision attaquée et à la révocation du brevet.

L'intimée conclut au rejet du recours. A titre de requêtes subsidiaires, elle requiert que le brevet soit maintenu sur la base des jeux de revendications C, D, E ou F par ordre de préférence, selon sa note du 9 octobre 1989.

Le jeu de revendications C diffère en ce que pour le composé D 0,05 est remplacé par 0,2 ; le jeu D en ce que les revendications 1 et 2 du brevet délivré ont été combinées ; le jeu E en ce que les revendications 1 et 2 du brevet maintenu par la division d'opposition ont été combinées ; et le jeu F en ce que les revendications 1 et 2 selon le jeu de revendications C ont été combinées.

Motifs de la décision

1. Le recours est recevable (voir III et IV).

- 2.1 Les modifications apportées à la revendication 1 de tous les jeux de revendications susmentionnés satisfont aux exigences de l'article 123(3) CBE, car la protection a été définie de manière plus restreinte que dans la revendication du brevet délivré. La même remarque s'applique pour les autres revendications.
- 2.2 L'objet des revendications des requêtes différentes n'a pas non plus été modifié de manière qu'il s'étende au-delà du contenu de la demande telle qu'elle a été déposée.

Les revendications correspondent aux revendications de la demande déposée, à l'exception de la revendication 8, en combinaison avec la page 8, ligne 30.

La revendication 8 est supportée par la page 10, lignes 4 à 15 de la demande déposée correspondant à la page 5, lignes 25 à 32 du brevet délivré.

Au vu de la décision relative à la requête principale, il n'est pas nécessaire de considérer le libellé des revendications des requêtes subsidiaires.

3. Le brevet en litige concerne des compositions organopolysiloxaniques susceptibles de réticuler en couches épaisses et confinées.

Les compositions réticulables comprennent des polymères principalement alpha-omega-di(hydroxy)diorganopolysiloxaniques (A), un agent réticulant du type polyacyloxysilane (B) et un accélérateur de durcissement (D). Selon la revendication 7 les constituants A et B sont remplacés par les produits dévolatilisés provenant de la réaction stoechiométrique de A avec B. L'accélérateur D est homogénéisé dans cette masse.

Les compositions susceptibles de réticuler en couches épaisses et confinées décrites dans le document (1a), que la division d'opposition et les opposantes ont considérées comme l'état de la technique le plus proche, comprennent les constituants A et B ou à la place de B le produit de la réaction entre A et B, et, comme accélérateur de durcissement D, l'oxyde de magnésium. Ces produits ont une meilleure tenue à la chaleur en atmosphère confinée sans réduction des propriétés adhésives.

Les compositions susceptibles de réticuler en couches épaisses et confinées décrites dans le document (5) que la Chambre, comme l'intimée, considère comme l'état de la technique le plus proche, comprennent du caoutchouc à liaisons acétoxysilicone réticulé d'une manière contrôlée par addition d'un aluminosilicate de sodium contenant 5 à 15 % en poids d'eau adsorbée.

Comme cet art antérieur, le brevet en litige concerne du caoutchouc à liaisons acétoxy (voir revendication 7 du brevet) réticulé d'une manière contrôlée avec un accélérateur.

A la lumière de cet art antérieur et au vu des exemples dans (5), le problème technique à résoudre peut être vu dans la mise à disposition d'une composition permettant d'accélérer et de contrôler la réticulation sans influence négative sur les propriétés mécaniques.

Selon le brevet attaqué, ce problème est schématiquement résolu par une telle composition comprenant comme accélérateur D un constituant choisi parmi les hydroxydes alcalins ou alcalino-terreux.

Selon la Chambre, il ressort de la description, en particulier de la page 7, ligne 64 à la page 8, ligne 10

ainsi que des exemples de mise en oeuvre, que les mesures mentionnées dans la revendication 1 permettent effectivement de résoudre le problème technique ci-dessus.

4. Après examen des documents cités, la Chambre est parvenue à la conclusion que la solution revendiquée n'y est pas divulguée et que l'exigence de nouveauté est donc satisfaite. L'objection de défaut de nouveauté initialement soulevée en procédure d'opposition n'ayant pas été maintenue, il n'y a pas lieu d'approfondir cette question.
5. Il reste donc à examiner si l'objet du brevet en litige dans la forme retenue par la division d'opposition implique une activité inventive, en particulier si la solution revendiquée découle de manière évidente des documents considérés.
- 5.1 Il convient d'abord de considérer la pertinence du document (5), c'est-à-dire dans quelle mesure l'enseignement de ce document, qui signale les avantages de l'eau adsorbée sur l'humidité atmosphérique pour l'accélération de la réticulation en couches épaisses et confinées, s'applique également à des accélérateurs contenant de l'eau chimiquement liée, comme les hydroxydes alcalins ou alcalino-terreux.

Comme mentionné ci-dessus, le document (5) cherche à éviter les inconvénients résultant de la diffusion lente de l'eau de l'atmosphère, à réticuler des joints confinés par l'incorporation d'un adsorbant d'eau, en l'espèce de l'alumino-silicate de sodium contenant 5 à 15 % d'eau adsorbée, et à contrôler la vitesse de la réticulation par libération de cette eau. L'eau a l'effet d'hydrolyser la liaison acétoxysilicone, ce qui a pour effet d'initier la réaction de réticulation. Il n'y a rien dans ce

document susceptible d'inciter l'homme du métier à remplacer l'eau adsorbée dans les silicates par les hydroxydes tels que définis dans la revendication 1 du brevet dans la perspective du problème à résoudre.

- 5.2 Le document (3) est le seul document cité par la requérante mentionnant la mise en oeuvre d'hydroxydes. Selon ce document, l'hydroxyde d'ammonium, qui est employé sous forme de solution aqueuse en concentration de 28 % (voir page 3, ligne 5), est simplement mis en contact avec les compositions (A+B), mais non dispersé dans la masse. En raison des caractéristiques hydrophobes du caoutchouc, une mise en dispersion de la solution n'était pas à envisager. Il n'était donc pas évident pour l'homme de l'art d'utiliser des hydroxydes alcalins, même si on admet que l'hydroxyde d'ammonium est parfois assimilé aux hydroxydes alcalins dans certains cas (4). Pour cette raison, la Chambre estime que l'homme du métier n'aurait pas combiné les documents (3) et (5) en cherchant des éléments de réponse au problème technique défini ci-dessus.

5.3 Comme mentionné ci-dessus, le document (1b) décrit une composition organopolysiloxanique contenant A et B et 1,5 moles d'oxyde de magnésium par mole de B. Il n'est fait nulle part mention d'hydroxydes alcalino-terreux dans (1a), ni dans (1b). De plus, l'objectif visé est moins l'accélération de la vitesse de réticulation qui se situe dans les exemples entre 18 et 72 heures, même si on se sert d'un produit intermédiaire (voir (1a) colonne 2, ligne 22) correspondant au produit de la revendication 7 du brevet en litige, que d'arriver à une réticulation satisfaisante en couches épaisses et confinées ainsi que d'avoir des produits ayant une meilleure tenue à la chaleur en atmosphère confinée sans réduction des propriétés adhésives (voir (1a), colonne 1, lignes 28 à 37).

De plus, l'homme du métier a conscience que l'estérification est une réaction d'équilibre et que, au vu de l'enseignement du document (1b), l'équilibre de la réticulation peut être influencé par l'addition d'oxyde de magnésium en tant que "Säurebinder". Mais rien dans le document (1a) ne laissait présager une telle accélération de la vitesse de réticulation par addition d'oxyde de magnésium.

Il en résulte que le document (1a), que ce soit seul ou en combinaison avec le document (5), n'est pas susceptible de donner à l'homme du métier les éléments nécessaires pour la solution du problème technique défini ci-dessus.

5.4 En ce qui concerne la réticulation d'une telle composition en présence d'hydroxyde de magnésium au lieu de l'oxyde de magnésium, il convient de se servir du document (1a) comme art antérieur le plus proche, comme la division d'opposition et la requérante.

A la lumière de cet art antérieur, le problème technique à résoudre peut être vu dans le contrôle d'une vitesse accrue de réticulation sans que soient affectées les propriétés mécaniques.

Selon le brevet en litige, ce problème est résolu par le remplacement l'oxyde de magnésium par des hydroxydes alcalins ou alcalino-terreux, comme par exemple l'hydroxyde de magnésium.

Selon la Chambre, il ressort de la description, en particulier des exemples de mise en oeuvre et des essais du 18 août 1989, que l'ensemble des mesures selon la revendication 1 permet effectivement de résoudre ce problème technique.

Cette solution implique aussi une activité inventive parce que l'homme du métier attendant au vu de (1b) une neutralisation de l'acide formé au cours de la réticulation, selon l'enseignement du document (1a), ne pouvait pas s'attendre à une augmentation de la vitesse de réticulation (jamais au-delà de trois heures au lieu de par exemple 18 à 72 heures) par la seule substitution de l'oxyde de magnésium par l'hydroxyde de magnésium.

L'argumentation de la requérante repose sur la connaissance du mécanisme réactionnel évoqué ci-dessus (point IV). Ces équations démontrent que l'eau peut être apportée aussi bien sous forme adsorbée que chimiquement liée. Elles font également ressortir que l'oxyde de magnésium, dont la mise en oeuvre est décrite dans le document (5), peut être remplacé par l'hydroxyde de magnésium qui contient une molécule d'eau sous forme chimiquement combinée.

Au vu de l'art antérieur considéré ci-dessus, cette explication basée sur des réactions chimiques ne peut

être interprétée que comme une reconstitution a posteriori de l'invention.

- 5.5 En conclusion, pour ces diverses raisons, l'objet de la revendication 1 implique une activité inventive.
6. La revendication 1 étant acceptable, il en est de même des revendications dépendantes 2 à 8, qui correspondent à des compositions préférées selon la revendication 1 et bénéficie à ce titre de la brevetabilité de l'objet de cette revendication, ainsi que des revendications indépendantes 9 et 10 qui concernent un procédé pour l'obtention de ces compositions et leurs utilisations.

Dispositif

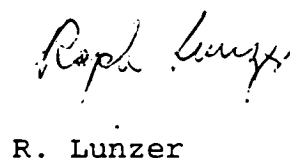
Pour ces motifs, il est statué comme suit :

Le recours est rejeté.

Le Greffier :


E. Gorgmaier

Le Président :


R. Lunzer