

Publication au Journal Officiel ~~Oui~~ / Non

N° de recours : T 238/90 - 3.3.2

N° de la demande : 83 401 662.8

N° de la publication : 0 102 293

Titre de l'invention : Procédé continu de préparation de silane

Classement : C01B 33/04

**D E C I S I O N**  
du 16 mars 1992

Demandeur : RHONE-POULENC CHIMIE

Opposant : DEGUSSA AG, Frankfurt - Zweigniederlassung Wolfgang

Référence :

CBE : Art. 83, 56

Mot clé : "Suffisance de description" (confirmée) - "Activité inventive"  
(confirmée)

**Sommaire**



## Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet européen n° 83 401 662.8 a donné lieu à la délivrance du brevet n° 0 102 293 sur la base de huit revendications.

II. La requérante (opposante) a formé opposition au brevet et requis sa révocation pour insuffisance de description et pour manque d'activité inventive vis-à-vis de l'enseignement des documents suivants :

(1) DE-C-1 244 744 correspondant à US-A-3 163 590 (3)

(4a) DE-C-2 743 002 correspondant à FR-A-2 365 518 (4)

III. Dans une décision intermédiaire, la Division d'opposition a constaté que le brevet dans la version modifiée déposée le 14 mai 1987 satisfaisait aux conditions de la CBE. La revendication 1 modifiée avait le libellé suivant :

"Procédé continu de préparation de silane par réaction de chlorosilanes sur de l'hydrure de lithium, électrolyse du chlorure de lithium obtenu et hydrogénation du lithium obtenu, ces diverses opérations étant effectuées dans des réacteurs spécifiques et dans un mélange de sels fondus constitué par du chlorure de lithium et au moins un chlorure alcalin et/ou alcalino-terreux, la composition dudit mélange étant voisine de la composition eutectique connue, caractérisé en ce que :

- les diverses réactions sont réalisées dans un mélange de base constitué d'un mélange de sels fondus comportant du chlorure de lithium, du chlorure de potassium et éventuellement d'autres chlorures alcalins ou alcalino-terreux ; ledit mélange de base véhicule les divers réactifs mis en oeuvre dans les différentes réactions : l'hydrure de lithium, le chlorure de lithium et le lithium

et circule en une boucle fermée entre ces réactions, la circulation dudit mélange entre chaque réaction étant contrôlable ;

- la réaction entre les chlorosilanes et l'hydrure de lithium est effectuée dans un réacteur alimenté en continu, d'une part en chlorosilanes, et d'autre part en un mélange comportant ledit mélange de base et de l'hydrure de lithium, la proportion d'hydrure de lithium est au plus égale à 21 moles pour 100 moles de mélange de base ; la réaction produit du silane et du chlorure de lithium provenant de la transformation de l'hydrure de lithium ;

- la réaction d'électrolyse du chlorure de lithium est effectuée en milieu naturellement agité dans un électrolyseur alimenté avec le mélange de sels fondus provenant de la réaction entre les chlorosilanes et l'hydrure de lithium ; ce mélange de sels fondus est constitué par le mélange de base et le chlorure de lithium issu de ladite réaction, la proportion dudit chlorure de lithium étant au plus égale à 21 moles pour 100 moles de mélange de base ; la réaction d'électrolyse donne naissance d'une part à du chlore et d'autre part à du lithium métallique qui est évacué avec le mélange de base ;

- la réaction d'hydrogénation du lithium est effectuée de préférence sous agitation dans un hydrogénateur alimenté d'une part avec le lithium et le mélange de base provenant de l'électrolyseur et d'autre part avec de l'hydrogène ; la réaction d'hydrogénation produit de l'hydrure de lithium provenant de la transformation du lithium, qui est évacué avec le mélange de base vers le réacteur réalisant la réaction entre les chlorosilanes et l'hydrure de lithium pour la production du silane."

Cette revendication était suivie de sept revendications dépendantes correspondant à celles du brevet délivré.

Dans sa décision intermédiaire, la Division d'opposition a indiqué que l'invention était suffisamment divulguée pour permettre à l'homme du métier de trouver un mode de réalisation pratique de celle-ci compte tenu de ses connaissances générales et de la technique connue décrite dans les documents analysés dans le brevet. Au sujet de l'activité inventive, la Division d'opposition a considéré que l'homme du métier n'aurait pas combiné l'enseignement des documents (1) et (4) étant donné que les problèmes rencontrés dans un procédé continu sont différents de ceux que pose un procédé discontinu ou semi-continu.

- IV. La requérante a formé un recours contre cette décision. Une procédure orale a eu lieu le 16 mars 1992. Celle-ci s'est déroulée en l'absence de l'intimée qui, en réponse à la citation à cette procédure, avait informé qu'elle ne comparait pas.

Les arguments présentés par la requérante dans son mémoire de recours et lors de la procédure orale peuvent être résumés comme suit :

Les caractéristiques du procédé divulguées dans le brevet sont évidentes au vu des documents (1) et (4a) et les éléments additionnels nécessaires à la résolution du problème posé ne sont pas suffisamment divulgués. Par rapport au procédé selon la figure 4 de (1) l'intimée affirme avoir résolu le double problème de la circulation difficilement contrôlable des flux entre les différents réacteurs et de la diffusion du LiH vers la cellule d'électrolyse. Cependant, les moyens permettant de résoudre ce double problème ne sont pas mentionnés dans le brevet ni même l'existence d'un problème dû à la diffusion du LiH. En particulier il n'est pas indiqué comment la circulation des flux est contrôlable ni par quels moyens la différence entre les vitesses de réaction dans chaque réacteur est compensée. La caractéristique supplémentaire, à savoir que

la circulation des flux est contrôlable, définit seulement un problème sans apporter aucune instruction quant à sa solution. La schématisation extrême de la figure 1 du brevet ne divulgue ni une alternative à la circulation par convection thermique, ni comment la circulation des flux est assurée. Il ne ressort pas non plus du brevet par quels moyens la diffusion du LiH dans la cellule d'électrolyse est évitée. La figure 4 de (1) illustre certes un transfert par surverse et montre une discontinuité entre les niveaux du bain, cependant dans le document "Chemie Ingenieur Technik, 1965, n° 1, pages 14-18" (document (6)) relatif au même procédé, aucune discontinuité n'est représentée sur la figure 5 et par conséquent le risque de diffusion n'est pas éliminé. Compte tenu des inconvénients indiqués dans le brevet en litige au sujet du procédé et du dispositif selon (3) l'homme du métier ne déduirait pas qu'il peut incorporer dans l'appareillage pour la mise en oeuvre du procédé revendiqué des éléments de la figure 4, en particulier le système de surverse.

Le procédé revendiqué se distingue du procédé selon (1) d'une part par le fait que le lithium est transporté dans le réacteur d'hydrogénation avec le mélange de sels fondus et d'autre part par la suppression des conduites 76 et 73. Il n'existe toutefois aucun préjugé dans l'état de la technique qui aurait pu détourner l'homme du métier d'envisager un transfert conjoint du lithium et du mélange de sels fondus. Dans ces conditions le procédé revendiqué n'implique pas d'activité inventive.

V. Dans sa réponse au mémoire de recours, l'intimée a fait valoir que l'indication dans le brevet de la non nécessité de séparer le lithium du bain de sels fondus permettait à l'homme du métier de déduire que le transfert conjoint ne pouvait avoir lieu qu'au niveau supérieur du bain compte tenu des connaissances générales relatives à la séparation rapide du lithium. Selon l'intimée, la solution pour réaliser ce transfert était représentée sur la figure 4 du

document (3) cité dans le brevet et par conséquent l'invention, en tant que perfectionnement de (3), était suffisamment exposée pour permettre sa mise en oeuvre. L'intimée a en outre souligné que le transfert conjoint s'effectuant par surverse, il existait obligatoirement une discontinuité entre les bains contenus d'une part dans le réacteur d'hydrogénation du Li et d'autre part dans la cellule d'électrolyse, ce qui empêchait toute diffusion du LiH vers cette dernière.

VI. La requérante requiert l'annulation de la décision de la Division d'opposition et la révocation du brevet. L'intimée sollicite le rejet du recours.

#### Motifs de la décision

1. Le recours est recevable.
2. Les revendications 1 à 8 diffèrent de celles du brevet délivré et de la demande telle que déposée uniquement par l'incorporation dans la revendication 1 de la caractéristique "la circulation dudit mélange entre chaque réaction étant contrôlable" et par la suppression de "où" dans la revendication 8. Cette dernière modification constitue une correction d'une erreur évidente. Quant à la caractéristique additionnelle de la revendication 1 elle trouve son support à la page 3, lignes 7 à 13 de la description initialement déposée. De plus, ces modifications n'étendent manifestement pas l'étendue de la protection du brevet délivré. Par conséquent, elles satisfont aux dispositions de l'article 123(2) et (3).
3. Selon la requérante, le brevet ne divulgue pas suffisamment les moyens permettant de réaliser sur le plan pratique le transfert conjoint du lithium et du mélange de sels fondus de la cellule d'électrolyse vers le réacteur

d'hydrogénation du Li ni les moyens permettant de contrôler la circulation du bain de sels fondus entre chaque réaction.

- 3.1 La Chambre constate en effet que les moyens mécaniques correspondants ne sont pas expressément décrits dans le brevet. Toutefois, conformément à la jurisprudence constante des Chambres de recours, l'homme du métier peut éventuellement combler des lacunes ou compléter des données imprécises à l'aide des connaissances générales de base lorsqu'il tente d'exécuter l'invention décrite dans le brevet. De plus, la demande telle que déposée et le brevet comportent une analyse du document (3) et il ressort clairement que le procédé objet du brevet est un perfectionnement du procédé selon (3), en particulier selon la figure 4 (voir brevet contesté, page 2, lignes 36 à 47). La Chambre est d'avis que, dans ces circonstances, l'homme du métier consulterait le document (3) au cas où, même en faisant appel aux connaissances générales, il aurait des difficultés à reproduire le procédé décrit dans l'exemple du brevet par suite d'une description trop succincte du dispositif utilisable.
- 3.2 D'après la description du brevet, le bain de sels fondus qui sert de véhicule des divers réactifs (LiH, LiCl et Li) circule en une boucle fermée. Il passe successivement dans le réacteur de production du silane, puis, après filtration éventuelle, dans le réacteur d'électrolyse où se forme le lithium ensuite dans le réacteur d'hydrogénation du Li et enfin à nouveau dans le réacteur de production du silane. Le lithium formé dans la cellule d'électrolyse est transféré conjointement avec le bain de sels fondus dans le réacteur d'hydrogénation contrairement au procédé selon (3). Il n'est certes pas indiqué dans le brevet par quels moyens le bain de sels fondus est amené à circuler entre ces réacteurs, ni comment cette circulation peut être contrôlée, cependant l'homme du métier connaît les moyens

classiques couramment utilisés pour faire circuler des liquides à débit plus ou moins élevé dans une installation comprenant plusieurs réacteurs séparés, par exemple des pompes à débit variable ou des pompes à débit constant associées à des vannes de commande de débit. Par conséquent, il essaierait sans aucun doute d'utiliser ces moyens usuels dans le dispositif selon le brevet d'autant plus que le document (3) prévoit éventuellement l'utilisation des pompes usuelles placées à des endroits appropriés (voir col.9, lignes 66-68). L'exemple du brevet indique non seulement la température moyenne du bain de sels fondus dans chaque réacteur mais aussi les débits du flux entrant et quittant chaque réacteur ainsi que sa composition. Pour reproduire l'exemple, l'homme du métier aurait donc à régler les débits des pompes et/ou des vannes dans l'étape de démarrage (ou lors d'une variation de production) de manière à atteindre les valeurs de débit indiquées dans l'exemple. La requérante n'ayant fourni aucune preuve montrant qu'un tel réglage exige une part excessive d'expérimentation supplémentaire ou ne peut être effectué sans avoir à surmonter des difficultés excessives, la Chambre ne peut partager son opinion que l'homme du métier ne saurait pas contrôler la circulation du bain de sels fondus.

- 3.3 Les moyens permettant de transférer conjointement le lithium et le bain de sels fondus de la cellule d'électrolyse vers le réacteur d'hydrogénation du Li ne sont pas divulgués explicitement dans le brevet. Toutefois, il fait partie des connaissances générales de l'homme du métier dans ce domaine technique que le lithium présente une densité beaucoup plus faible que celle du bain de sels fondus (LiCl-KCl) et qu'il monte donc vers la surface du bain. Par conséquent, il est implicite pour l'homme du métier d'effectuer le transfert conjoint au niveau supérieur du bain de sels fondus contenu dans la cellule d'électrolyse. En supposant au profit de la requérante que l'homme du métier ne connaisse aucun dispositif utilisable

pour effectuer un tel transfert, il consulterait le document (3) dont le présent procédé est un perfectionnement avant d'abandonner ses tentatives de reproduction de l'invention, comme indiqué au point 3.1. Au vu de la figure 4 et de la description correspondante qui divulguent le transfert du lithium par un système de surverse avec discontinuité entre le niveau du bain contenu dans la cellule d'électrolyse et celui du réacteur d'hydrogénation, l'homme du métier envisagerait d'utiliser un système de surverse analogue pour le transfert conjoint du Li et du bain de sels fondus. La requérante n'a pas contesté qu'au moyen de ce système il est possible d'effectuer le transfert conjoint selon l'invention compte tenu de l'alimentation forcée du bain de sels fondus dans la cellule d'électrolyse.

- 3.4 La Chambre ne peut se rallier à l'opinion de la requérante selon laquelle l'homme du métier n'utiliserait pas des éléments du dispositif représenté à la figure 4 de (3) à la lecture des inconvénients signalés dans le brevet. Les inconvénients mentionnés sont d'une part la nécessité de séparer le Li du bain de sels fondus avant d'en opérer l'hydrogénation et d'autre part la mise en oeuvre délicate de l'ensemble des réactions dans les régimes transitoires du fait qu'elles doivent être réalisées simultanément sans tenir compte de leurs cinétiques différentes. Il ne ressort cependant pas de cette indication que ces inconvénients sont dus au système de surverse en soi ni qu'aucun élément du dispositif décrit dans (3) ne peut être réutilisé dans le dispositif pour la mise en oeuvre du procédé selon le brevet qui représente un perfectionnement du procédé selon (3). Dans le cadre d'un perfectionnement, il apparaît d'ailleurs normal de réutiliser certains des éléments connus.

Le fait que la figure 5 du document (6) n'illustre pas de discontinuité entre les niveaux du bain dans la cellule d'électrolyse et dans le réacteur d'hydrogénation du Li n'a

aucune influence en ce qui concerne la suffisance de description puisque ce document n'est mentionné ni dans le brevet en litige, ni dans le document (3) auquel le brevet fait référence. De plus, l'homme du métier déduit de l'exemple du brevet qu'il n'y a pas de perte de LiH. Par conséquent, même en supposant qu'il ait non seulement le document (3) à sa disposition mais aussi (6), il ne choisirait certainement pas un dispositif pour le transfert conjoint du Li et du bain, qui, comme l'affirme la requérante, n'éliminerait pas les risques de diffusion du LiH vers la cellule d'électrolyse.

Il découle de ce qui précède que le procédé objet de la demande de brevet et du brevet est suffisamment divulgué pour permettre à l'homme du métier de l'exécuter et répond donc aux exigences de l'article 83.

4. Etant donné qu'aucun des documents cités ne divulgue un procédé continu de préparation de silane comprenant la succession de réactions indiquées précédemment, dans lequel le Li est transféré conjointement avec le mélange de sels fondus de la cellule d'électrolyse à l'hydrogénéateur du lithium, le procédé revendiqué est nouveau.
  
5. La Chambre considère, en accord avec les parties, que le document (1) (ou son correspondant (3) en anglais) représente l'état de la technique le plus proche, en particulier le mode de réalisation selon la figure 4. Ce document décrit un procédé continu de préparation de silane comprenant la réaction de chlorosilanes avec l'hydrure de lithium, l'électrolyse du chlorure de lithium formé lors de cette réaction et l'hydrogénation du Li obtenu par électrolyse, chacune de ces opérations ou réactions étant effectuée dans une zone séparée et dans une masse fondue constituée d'un mélange de chlorure de lithium et de chlorure de potassium ayant une composition voisine de l'eutectique. Le mélange de sels fondus circule d'une zone

à l'autre et transporte ainsi l'hydrure de lithium vers la chambre de production du silane et le chlorure de lithium vers la cellule d'électrolyse. Le lithium produit dans cette dernière flotte à la surface du bain de sels fondus et est transféré séparément vers la chambre d'hydrogénation du Li (voir figure 4, conduite 66) tandis que la circulation du bain de sels fondus est réalisée au niveau inférieur de la cellule d'électrolyse (cf. conduites 76 et 75). Le bain de sels fondus circule entre la chambre d'hydrogénation du Li et la chambre de formation du silane dans les conduites 72 et 73 par suite de la convection thermique (voir revendications 1, 3 ; figure 4 ; col. 8, lignes 34-68 , col. 9, lignes 1-65).

La mise en oeuvre de ce procédé est délicate en particulier dans les régimes transitoires correspondant au démarrage, à l'arrêt, et aux variations de production du fait que toutes les réactions doivent être réalisées simultanément sans tenir compte de leur cinétique respective (voir brevet en litige, page 2, lignes 36-42). Il découle de plus du document (1) ou du document (3) cité dans le brevet que le rendement est diminué par un transport partiel de l'hydrure de lithium dans la cellule d'électrolyse où il est détruit électrochimiquement (voir (1) col. 12, lignes 26-30 ; (3), col. 8, lignes 13-16).

- 5.1 Partant de cet état de la technique, le problème technique à résoudre était d'éliminer ces inconvénients et de mettre au point un procédé continu permettant d'obtenir un rendement optimal.

Conformément à la revendication 1, la solution proposée consiste en ce que le lithium formé dans la cellule d'électrolyse est transféré conjointement avec le mélange de sels fondus vers le réacteur d'hydrogénation du Li ; la circulation du bain de sels fondus véhiculant le lithium, l'hydrure de lithium et le chlorure de lithium entre les réacteurs spécifiques est contrôlable ; et il n'est plus

nécessaire de faire appel à une circulation par convection thermique.

5.2 Il ressort des données numériques indiquées dans l'exemple de brevet (page 5) que tout l'hydrure de lithium formé dans le réacteur d'hydrogénation du Li réagit avec le trichlorosilane et le tétrachlorosilane et par conséquent que les diminutions de rendement dû au transport partiel de LiH dans la cellule d'électrolyse ont été supprimées. D'après les indications figurant dans le brevet, page 2, lignes 44-53, le procédé revendiqué permet de maîtriser totalement et sans aucune difficulté les régimes transitoires. En l'absence de preuve du contraire, il apparaît crédible que la solution proposée qui ne nécessite plus une circulation par convection thermique et permet de supprimer les conduites 76 et 73 de la figure 4 facilite la mise en oeuvre du procédé dans les régimes transitoires. La Chambre n'a donc aucune raison de douter que le problème posé a été réellement résolu par le procédé revendiqué.

5.3 Dans son mémoire de recours, la requérante a certes affirmé que le procédé revendiqué n'impliquait pas d'activité inventive au vu de l'enseignement des documents (1) et (4a), cependant elle n'a pas motivé cette affirmation. Lors de la procédure orale devant la Chambre, elle a basé son argumentation uniquement sur le document (1) sans envisager une éventuelle combinaison avec le document (4a).

La Chambre a cependant pris en considération l'enseignement divulgué dans (4a) et a vérifié qu'elle aboutissait à la même conclusion que la Division d'opposition. En effet, ce document mentionne tout d'abord les inconvénients du procédé continu selon (6), c'est-à-dire un procédé du type décrit dans (1), et propose un procédé discontinu ou semi-continu de préparation du silane dans lequel la réaction d'hydrogénation du Li et la réaction de LiH avec le chlorosilane sont conduites dans un même réacteur indépendamment de la cellule d'électrolyse, ce réacteur

comprenant un tube creux disposé dans sa partie inférieure et des moyens d'agitation pour faire circuler le liquide dans ladite partie inférieure. Dans le cas du procédé semi-continu on opère dans deux réacteurs de ce type et deux cellules d'électrolyse, l'un des récipients restant toujours vide (voir colonne 1, ligne 55 à colonne 2, ligne 39 ; colonne 5, lignes 30 à 39). Il est indiqué que le lithium est introduit dans le réacteur avec LiCl ou avec le bain de sels fondus (cf. colonne 4, lignes 36-38, colonne 6, lignes 60-61), cependant cette mesure n'est pas considérée comme essentielle dans le procédé selon (4a). Ce document ne contient aucune information susceptible de suggérer à l'homme du métier que l'application de cette mesure à un procédé continu selon (1) permettrait, en combinaison avec la suppression des conduites 76 et 73 de la figure 4 et par conséquent de la circulation par convection thermique, de résoudre le problème défini au point 5.1 précédent.

La Chambre ne partage pas l'opinion de la requérante que le procédé revendiqué découlerait de façon évidente du document (1) pris isolément. L'intimée n'a certes pas apporté la preuve de l'existence d'un préjugé technique à l'encontre du transfert conjoint du Li et du bain vers le réacteur d'hydrogénation du Li dans un procédé continu, et par conséquent, il ne peut être conclu qu'un tel préjugé existait ; cependant le document (1) ne prévoit pas cette alternative et même dans le mode de réalisation des figures 5 et 6 permettant d'éliminer les pertes d'hydrure de lithium, le lithium est encore introduit séparément dans le réacteur d'hydrogénation. Etant donné que l'enseignement de (1) ne laisse pas entrevoir qu'un transfert conjoint du Li et de la masse fondue vers la chambre d'hydrogénation du Li aurait pu contribuer à surmonter les difficultés de mise en oeuvre du procédé continu dans les régimes transitoires et à éliminer les pertes de LiH, la conclusion de la requérante semble résulter d'une analyse a posteriori.

Pour les raisons indiquées précédemment, le procédé selon la revendication 1 est considéré comme impliquant une activité inventive et satisfait donc aux conditions de l'article 56.

6. Les revendications 2 à 8 , qui concernent les modes de réalisation particuliers, bénéficient de la brevetabilité de la revendication 1 et sont donc acceptables.

### Dispositif

Pour ces motifs, il est statué comme suit :

Le recours est rejeté.

Le Greffier

Le Président

P. Martorana

P. Lançon