

BESCHWERDEKAMMERN
DES EUROPÄISCHEN
PATENTAMTS

BOARDS OF APPEAL OF
THE EUROPEAN PATENT
OFFICE

CHAMBRES DE RECOURS
DE L'OFFICE EUROPEEN
DES BREVETS

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

N° de recours : T 989/92- 3.3.3
N° de la demande : 88 403 263.2
N° de la publication : 0 327 773
Classement : C08G 77/54
Titre de l'invention : Polysiloxazanes, leur procédé de préparation, leur utilisation comme précurseurs de céramiques et lesdites céramiques

D E C I S I O N
du 5 juillet 1993

Demandeur : ELF ATOCHEM S.A.

CBE : Art. 54

Mot clé : "Nouveauté (oui, après modification)"



Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Office européen
des brevets

Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

N^o. du recours : T 989/92 - 3.3.3

D E C I S I O N
de la Chambre de recours technique 3.3.3
du 5 juillet 1993

Requérante : ELF ATOCHEM
4 & 8, Cours Michelet
La Défense 10
F - 92800 Puteaux (FR)

Mandataire : Rochet, Michel
ELF ATOCHEM S.A.
Département Propriété Industrielle
4-8, Cours Michelet
La Défense 10 - Cedex 42
F - 92091 Paris-La-Défense (FR)

Décision attaquée : Décision de la division d'examen de l'Office européen des brevets du 7 juillet 1992 par laquelle la demande de brevet n^o 88 403 263.2 a été rejetée conformément aux dispositions de l'article 97(1) CBE.

Composition de la Chambre :

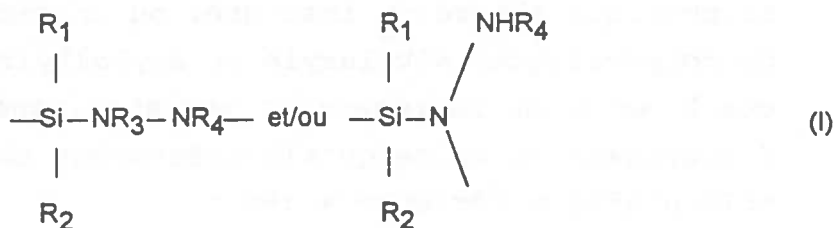
Président : F. ANTONY
Membres : C. GERARDIN
S. PERRYMAN

Exposé des faits et conclusions

I. La demande de brevet européen n° 88 403 263.2 déposée le 21 décembre 1988, pour laquelle a été revendiquée la priorité du 28 décembre 1987 fondée sur un dépôt antérieur en France, a été rejetée en vertu de l'article 97(1) CBE le 7 juillet 1992 par décision de la division d'examen.

II. La demande a été rejetée sur la base des revendications 1 à 3 d'origine et des revendications 4 à 14 déposées le 27 février 1992 ; les revendications plus spécialement considérées dans cette décision s'énonçaient comme suit :

Revendication 1 : "Nouveaux polysiloxazanes caractérisés en ce qu'ils comprennent des motifs de formule :



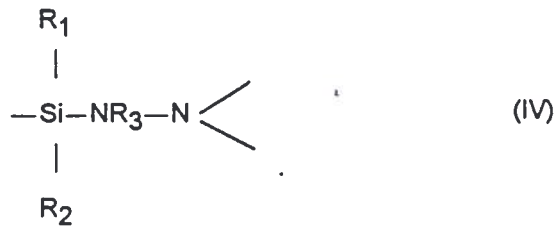
associés à des motifs de formule :



et éventuellement à des motifs de formule :



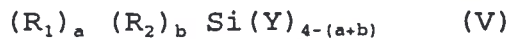
et éventuellement à des motifs de formule :



formules dans lesquelles les radicaux R_1 et R_2 , R_3 et R_4 , qui peuvent être identiques ou différents, peuvent représenter un atome d'hydrogène, un radical hydrocarboné aliphatique saturé ou insaturé, ou un radical aryle mono- ou polycyclique, alkylaryle ou arylalkyle sous réserve que R_1 et R_2 ne représentent pas simultanément un atome d'hydrogène et en ce qu'ils présentent une masse moléculaire supérieure à 350."

Revendication 5 : "Procédé de préparation des polysiloxazanes selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce qu'il consiste à faire réagir :

- au moins un halogénosilane de formule :



- avec au moins une hydrazine de formule :



formules dans lesquelles les symboles R_1 , R_2 ainsi que R_3 et R_4 ont les significations données précédemment, Y représente un atome d'halogène et notamment de chlore et $(a+b)$ représente un nombre compris entre 0 et 3 inclus et, de préférence environ 2.

- et avec de l'eau."

Revendication 13 : "Polysiloxazanes selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisés en ce qu'ils se trouvent sous forme d'articles conformés tels que fibres, filaments, poudres, films, revêtements, paillettes, conduits, mousses ou articles tissés, non tissés ou matériaux composites."

Revendication 14 : "Articles en céramiques, caractérisés en ce qu'ils contiennent les proportions suivantes d'éléments (en poids) :

- 30 à 70 % de Si
- 2 à 30 % de N
- 1 à 25 % de O
- 0 à 35 % de C

et sont obtenus par pyrolyse à une température d'au moins 700°C de polysiloxazanes conformés selon la revendication 13."

Les revendications 2 à 4 étaient des revendications dépendantes concernant des polysiloxazanes préférés selon la revendication 1 ; les revendications 6 à 12 étaient des revendications dépendantes portant sur des modalités particulières de mise en oeuvre du procédé selon la revendication 5.

III. Les motifs invoqués pour le rejet s'appuyaient sur le fait que l'objet de la demande, en particulier tel que défini dans les revendications 1 et 5, n'était pas nouveau à l'égard de l'enseignement des documents suivants :

- (1) WO-A-86/06 377,
- (2) EP-A-237 199.

Plus spécifiquement, il était indiqué que l'exemple 10 du document (1) décrivait la préparation de polysiloxazane à partir d'ammoniac ; la revendication 29 mentionnant

explicitement l'utilisation de l'hydrazine ou de l'hydrazine substituée comme source d'azote, il en résultait une divulgation implicite d'un polysiloxazane comportant des motifs dérivés de l'hydrazine, donc d'un produit possédant les unités récurrentes (I) et (II) selon la revendication 1 de la demande. De même, la revendication 5 était anticipée par le document (2) ; en effet, aussi bien l'utilisation de mélanges d'hydrazine et d'ammoniac que la présence de substituants organiques dans le silane de départ représentaient des modalités particulières de mise en oeuvre du procédé selon le document (2), qui n'étaient pas exclues de la revendication 5 de la demande. Pour les mêmes raisons, l'objet de la revendication 14 n'était pas nouveau. De même, les revendications 6 à 13, qui dépendaient de la revendication 5, ne pouvaient pas être accordées. En conclusion, la demande était "rejetée dans sa totalité car ne satisfaisant pas aux dispositions des articles 52(1) et 56 de la CBE".

IV. Le 27 août 1992, la requérante (demanderesse) 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 23 octobre 1992.

- i) A titre préliminaire, la requérante observait que dans la notification du 30 septembre 1991 seule une objection quant au fond au titre de l'article 54 CBE avait été soulevée, alors que l'article 56 CBE (défaut d'activité inventive) était mentionné comme motif de rejet pour la première fois dans la décision du 7 juillet 1992. Les dispositions prévues à l'article 113(1) CBE n'avaient donc pas été respectées.
- ii) Quant au fond, la requérante faisait d'abord valoir que le polysiloxazane préparé dans

l'exemple 10 du document (1) ne comportait pas de motifs dérivés de l'hydrazine. De plus, la substitution de l'ammoniac par l'hydrazine n'était pas évidente en raison des conditions expérimentales qui étaient propices à la décomposition de l'hydrazine ; il n'était donc pas possible de conclure qu'il en résulterait un polysiloxazane tel que revendiqué. Le procédé selon la revendication 5 était également nouveau, car le dihalosilane mis en oeuvre dans le document (2) était constitué de 90 à 100 % de composés ayant deux atomes d'hydrogène, ce que la définition des radicaux R_1 et R_2 dans la demande excluait précisément ; par ailleurs, l'hydrazine ne pouvait pas être utilisée seule, mais uniquement en mélange avec l'ammoniac. Le rejet de la revendication 13 n'était pas fondé, car cette revendication dépendait des revendications de produit 1 à 4, non de la revendication de procédé 5. Enfin, les articles en céramique selon la revendication 14 étaient nouveaux, puisque les polysiloxazanes eux-mêmes étaient nouveaux.

- iii) Afin de mieux souligner cette corrélation, la requérante a déposé en annexe au mémoire de recours, à titre de requête principale, un nouveau jeu de quatorze revendications, dans lequel les revendications 1 à 13 avaient été maintenues et la revendication 14 avait été formulée comme suit : "Procédé de fabrication d'articles en céramique caractérisé en ce qu'il consiste à pyrolyser à une température d'au moins 700°C un polysiloxazane selon la revendication 13."

En annexe était également joint un jeu de seize revendications à considérer à titre de requête subsidiaire.

iv) En réponse à une notification de la chambre, où celle-ci exprimait la même opinion de défaut de nouveauté implicite que la division d'examen, la requérante a déposé le 12 mai 1993 une version modifiée des revendications 1 à 14 ci-dessus, dans laquelle la revendication 1 avait été complétée comme suit : "caractérisés en ce que le rapport du nombre de motifs de formule (I) au nombre de motifs de formule (II) est supérieur à 1." De plus, le mot "Nouveaux" avait été supprimé.

V. La requérante conclut à l'annulation de la décision attaquée et à la délivrance d'un brevet européen sur la base des revendications 1 à 14 déposées le 12 mai 1993.

Motifs de la décision

1. Le recours répond aux conditions énoncées aux articles 106 à 108 ainsi qu'à la règle 64 CBE ; il est recevable.
2. Le libellé des revendications 1 à 14 satisfait aux dispositions de l'article 123(2) CBE.

La revendication 1 diffère de la revendication 1 telle que déposée par la suppression du mot "nouveaux" et par l'adoption de la forme en deux parties, la partie caractérisante précisant que le rapport du nombre de motifs de formule (I) au nombre de motifs de formule (II) est supérieur à 1. Cette condition découle implicitement des proportions des divers composés de départ, en particulier de la mise en oeuvre d'un nombre de moles d'eau inférieur à la moitié du nombre de moles d'atomes de silicium (demande d'origine, page 6, lignes 17 à 19). Quant à la suppression du mot "nouveaux", il ne saurait en résulter une définition élargie des produits revendiqués. La revendication 6 diffère de la

revendication 6 d'origine par la suppression du composé H_2SiCl_2 , de la liste des halogénosilanes utilisables comme produits de départ. La revendication 10, qui précise les quantités d'amine et d'hydrazine mises en oeuvre pour la préparation des polysiloxazanes, est supportée par la page 6, lignes 26 à 30 de la description de la demande d'origine. La revendication 14 reprend sous la forme d'une revendication de procédé les caractéristiques opératoires de la revendication 14 d'origine, qui était une revendication de produit défini par le procédé. Quant aux revendications 2 à 5, 7 à 9 et 11 à 13, elles correspondent à la version d'origine de ces revendications.

3. Le premier point à considérer est la nouveauté des polysiloxazanes selon la revendication 1.

3.1 L'enseignement général du document (1) porte sur un procédé de préparation de silazanes contenant au moins deux groupes Si-N. Selon la variante (a) de la revendication 1, le silazane est obtenu à partir d'un précurseur contenant au moins un groupe Si-N par scission de cette liaison en présence d'un catalyseur métallique et d'hydrogène ou d'un donneur d'hydrogène, puis par recombinaison du produit de scission ; selon la variante (b), le silazane est obtenu par synthèse directe en solution à partir d'un composé contenant un groupe Si-H et d'un composé contenant un groupe N-H (revendication 1 ; page 4, ligne 18 à page 5, ligne 2). Dans ce cas, le groupe N-H peut provenir de l'ammoniac, d'une amine primaire ou secondaire, ou de l'hydrazine ou de ses dérivés (page 5, lignes 28 à 32). La possibilité d'utiliser l'hydrazine ou ses dérivés de substitution est également mentionnée dans la revendication 29. Enfin, l'introduction de la description signale que le procédé de préparation des produits contenant le motif Si-N

concerne aussi bien les silazanes que les siloxazanes (page 1, lignes 23 à 26).

Il est donc évident que l'enseignement du document (1) est très large en ce sens qu'il englobe diverses variantes, en particulier les alternatives amines/hydrazines et polysilazanes/polysiloxazanes.

- 3.2 C'est à la lumière de cette conclusion qu'il convient d'interpréter l'exemple 10, qui décrit la préparation de polysiloxazane à partir d'ammoniac et de 1,1,3,3-tétraméthylidisiloxane.

Bien qu'aucune alternative - en particulier la mise en oeuvre d'une hydrazine - ne soit prévue de manière explicite, la chambre estime que cet exemple interprété dans le cadre de l'enseignement général du document (1) représente pour l'homme du métier une divulgation implicite d'un polysiloxazane comprenant des motifs dérivés de l'hydrazine. En effet, selon la jurisprudence des chambres, l'enseignement de l'art antérieur ne se réduit pas à la divulgation explicite, mais englobe l'ensemble des informations mises à la disposition de l'homme du métier. Ainsi, dans la décision T 12/81 "Diastéréoisomères", JO OEB 1982, 296, la chambre a estimé qu'un document antérieur détruit la nouveauté d'un produit, dès lors que l'homme du métier peut y puiser toutes les informations nécessaires concernant le(s) produit(s) de départ et les conditions réactionnelles pour préparer ledit produit, même si celui-ci n'est pas décrit dans tous ses détails (motifs de la décision, points 8 à 10). Cette approche a été confirmée dans les décisions publiées T 198/84 "Thiochloroformiates / HOECHST", JO OEB 1985, 209 (voir point 4, deuxième paragraphe) et T 124/87 "copolymères / DU PONT", JO OEB 1989, 491 (voir point 3.4, troisième paragraphe), ainsi que dans de nombreuses autres décisions non publiées.

3.3 Selon l'enseignement général du document (1), le composé porteur d'un groupe NH peut être l'ammoniac, une amine primaire ou secondaire, ou l'hydrazine ou ses dérivés de substitution (page 5, ligne 28 à page 6, ligne 14). Il est raisonnable d'admettre que le choix de ce composé de départ est déterminé par la structure du composé à préparer, autrement dit que la mise en oeuvre d'une hydrazine a pour but de préparer un polymère contenant effectivement des unités hydrazine. L'hypothèse inverse, c'est-à-dire la mise en oeuvre d'une hydrazine pour préparer un produit qui pourrait être obtenu à partir d'ammoniac ou d'une amine, n'est évidemment guère plausible d'un point de vue économique.

La référence aux conditions expérimentales mises en oeuvre dans l'exemple 10 n'est pas appropriée pour démontrer l'absence d'unités hydrazine dans le polysiloxazane correspondant. D'abord, il convient d'apprécier que l'objet de la revendication 1 de la demande en cause est un produit en tant que tel, c'est-à-dire revendiqué indépendamment de son procédé de préparation. De plus, l'exemple 5 du document (1) montre que, lorsque l'hydrazine est mise en oeuvre, la température de réaction (135°C) est très inférieure à la température de décomposition de l'hydrazine (250°C) (voir Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, Wiley & Sons, 1980, volume 12, page 738 ; Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, Verlag Chemie Weinheim, 1977, volume 13, page 95). De même, l'argument de la requérante relatif à l'influence négative du catalyseur de synthèse, en l'occurrence $Ru_3(CO)_{12}$, sur la stabilité thermique de l'hydrazine doit être relativisé, dans la mesure où les métaux carbonyles ne font pas partie des composés mentionnés dans ces deux ouvrages de référence comme favorisant particulièrement la décomposition de l'hydrazine. Par ailleurs, le document (2), qui sera discuté en détail ci-dessous, montre bien que l'hydrazine

est en mesure de participer effectivement en tant que telle à la formation du polymère. Il est donc évident aux yeux de la chambre que les conditions expérimentales de la réaction de synthèse sont dictées par le choix du composé azoté de départ et que, en particulier, la mise en oeuvre d'hydrazine implique des conditions de température assurant la présence de cette unité de structure dans le produit final.

Bien que cette question ait été controversée en procédure d'examen, elle n'est pas déterminante dans le cas présent pour décider de la nouveauté des produits revendiqués, comme cela ressortira du paragraphe suivant.

- 3.4 L'analyse du polysiloxazane préparé selon l'exemple 10 révèle la présence, d'une part, de motifs récurrents (A) comprenant un nombre égal d'unités -SiO- et -SiNH-, et, d'autre part, de motifs récurrents (B), dans lesquels les unités -SiO- sont toujours supérieures en nombre aux unités -SiNH-. Il en résulte que dans le polymère considéré dans sa totalité les unités -SiO- sont toujours en excès par rapport aux unités -SiNH-. Même si l'enseignement de cet exemple est extrapolé à l'hydrazine, cette conclusion reste valable ; en effet, en l'absence de toute autre référence explicite à des polysiloxazanes dans le document (1), il n'y a pas lieu d'attribuer une autre valeur au rapport (A) : (B).

La partie caractérisante de la revendication 1 de la demande en cause, qui impose au contraire un excès d'unités silazane par rapport aux unités siloxane, permet donc de distinguer les produits revendiqués des produits connus.

- 3.5 Il en résulte que les polysiloxazanes tels que définis dans la revendication 1 sont nouveaux.

4. De même, le procédé tel que défini dans la revendication 5 de la demande est nouveau à l'encontre de l'enseignement du document (2).

Ce document décrit la préparation de polysiloxazanes à partir d'un dihalosilane, éventuellement sous forme complexée avec une base de Lewis, d'ammoniac et d'eau (page 2, lignes 33 à 36). Selon une modalité particulière de mise en oeuvre, l'hydrazine peut être utilisée en mélange avec l'ammoniac, ce qui conduit à l'incorporation de l'unité correspondante dans la chaîne (page 3, lignes 39 à 41). Le rapport du nombre de motifs silazane au nombre de motifs siloxane, qui est déterminé par le rapport molaire ammoniac : eau, peut varier entre de larges limites (page 3, lignes 44 à 46). La quantité totale de motifs récurrents est comprise entre 4 et 300 (page 3, lignes 47 à 51), ce qui conduit dans le cas de l'exemple 1 à un poids moléculaire du polymère de l'ordre de 1100.

Malgré ces points communs, le procédé selon l'art antérieur se distingue du procédé revendiqué par la définition du silane mis en oeuvre. Selon le document (2), ce composé est un dihalosilane, c'est-à-dire un dihalomonosilane de formule SiH_2X_2 ou un dihalodisilane de formule $\text{Si}_2\text{H}_4\text{X}_2$, dans lesquelles X représente un atome de fluor, de chlore, de brome ou d'iode (page 3, lignes 6 à 8) ; ces deux composés sont caractérisés par l'unité SiH_2 qui est explicitement exclue dans la demande en cause, puisque R_1 et R_2 dans la revendication 5, tout comme dans la revendication 1, ne peuvent pas représenter simultanément un atome d'hydrogène. Même s'il est envisagé d'utiliser un dihalosilane substitué, par exemple par un radical hydrocarboné, ce composé est toujours en mélange avec le dihalosilane dihydrogéné et représente au maximum 10 % de ce mélange (page 3, lignes 41 à 43).

En pratique, aucune de ces variantes n'est illustrée dans les exemples et le dihalosilane y est toujours utilisé sous forme de complexe avec la pyridine de formule $\text{SiH}_2\text{Cl}_2 \cdot 2\text{C}_5\text{H}_5\text{N}$. Dans la demande en cause, au contraire, la pyridine ou, plus généralement, l'amine tertiaire a pour fonction lors de la réaction de synthèse de former l'halogénohydrate correspondant et, par là-même, de limiter la formation d'halogénohydrate d'hydrazine (comparer demande, page 4, lignes 55 à 58).

Ces différences dans la définition des produits de départ, qui se répercutent dans la formule générale du polysiloxazane (unités SiH_2 dans l'art antérieur ; unités SiR_1R_2 dans la demande), montrent qu'aussi bien dans les moyens mis en oeuvre que dans le produit recherché le procédé revendiqué se distingue du procédé connu. Pour ces diverses raisons, l'objet de la revendication 5 est donc nouveau.

5. Les considérations ci-dessus s'appliquent également aux revendications dépendantes de produit 2 à 4, qui visent des polymères préférés tels que définis dans la revendication 1, et aux revendications 13 et 14, qui sont assimilables à des revendications d'utilisation de ces produits, ainsi qu'aux revendications dépendantes de procédé 6 à 12, qui concernent des modalités particulières de mise en oeuvre du procédé selon la revendication 5.
6. Dans l'introduction du mémoire de recours la requérante a fait valoir que la demande avait été rejetée "car ne satisfaisant pas aux dispositions des articles 52(1) et 56 de la CBE", alors que la question de l'activité inventive n'avait été ni abordée dans la notification du 30 septembre 1991, ni discutée dans la décision de rejet. La question se pose donc de savoir si la conclusion de la division d'examen constitue un vice substantiel de

procédure au titre de l'article 113(1) CBE justifiant le remboursement de la taxe de recours en application des dispositions de la règle 67 CBE, même en l'absence formelle d'une requête dans ce sens.

Après s'être attachée à démontrer le défaut de nouveauté des produits selon les revendications 1 à 4 (points 2 à 4), puis le défaut de nouveauté du procédé selon la revendication 5 (point 5, premier paragraphe), la division d'examen a simplement constaté que les revendications 6 à 13 dépendaient de la revendication 5 et ne pouvaient donc qu'en partager le destin (point 5, troisième paragraphe). La nature des objections soulevées au point 3 de la notification du 30 septembre 1991 et des raisons données dans la décision de rejet, en particulier l'absence de toute discussion de l'activité inventive, ne laisse aucun doute sur le fait que le seul motif de cette décision était le défaut de nouveauté de l'objet des deux revendications indépendantes 1 et 5. Le contenu du mémoire de recours confirme d'ailleurs cette interprétation, puisque la requérante n'y fait aucune allusion à l'activité inventive. La référence à l'article 56 CBE en conclusion de la décision attaquée n'est donc pas cohérente au vu de l'ensemble du dossier et semble plutôt attribuable à une erreur dactylographique. Cette incohérence n'ayant pas été déterminante pour la décision de rejet, la chambre estime que la mention de l'article 56 CBE en conclusion des motifs de la décision n'équivaut pas à un vice substantiel de procédure au titre de l'article 113(1) CBE et que, par conséquent, la question du remboursement de la taxe de recours ne se pose pas.

7. Bien qu'il ait été fait droit au recours, un brevet européen ne peut être délivré du fait que seule la nouveauté des revendications 1 à 14 déposées le 12 mai 1993 a été examinée dans la présente décision. L'affaire est donc renvoyée devant la première instance pour poursuite de l'examen sur la base de ces revendications.

Dispositif

Par ces motifs, il est statué comme suit :

1. La décision attaquée est annulée.
2. L'affaire est renvoyée devant la première instance pour poursuite de l'examen sur la base des revendications 1 à 14 déposées le 12 mai 1993.

Le Greffier :

Le Président :

E. Görgmaier

F. Antony