

Interner Verteilerschlüssel:

- (A) Veröffentlichung im AB1.
(B) An Vorsitzende und Mitglieder
(C) An Vorsitzende
(D) Keine Verteilung

**Datenblatt zur Entscheidung
vom 31. Juli 2007**

Beschwerde-Aktenzeichen: T 0314/05 - 3.3.07

Anmeldenummer: 97119496.4

Veröffentlichungsnummer: 0841090

IPC: B01J 23/44

Verfahrenssprache: DE

Bezeichnung der Erfindung:

Katalysator und Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-
Verbindungen

Anmelderin:

BASF Aktiengesellschaft

Einsprechender:

-

Stichwort:

-

Relevante Rechtsnormen:

EPÜ Art. 56

Schlagwort:

"Erfinderische Tätigkeit - Aufgabe und Lösung - bejaht"

Zitierte Entscheidungen:

-

Orientierungssatz:

-



Aktenzeichen: T 0314/05 - 3.3.07

ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.07
vom 31. Juli 2007

Beschwerdeführerin:
(Patentanmelderin)

BASF Aktiengesellschaft
D-67056 Ludwigshafen (DE)

Vertreter:

Isenbruck, Günter
Isenbruck, Bösl, Hörschler, Wichmann, Huhn
Patentanwälte
Theodor-Heuss-Anlage 12
D-68165 Mannheim (DE)

Angefochtene Entscheidung:

Entscheidung der Prüfungsabteilung des
Europäischen Patentamts, die am
27. Oktober 2004 zur Post gegeben wurde und
mit der die europäische Patentanmeldung
Nr. 97119496.4 aufgrund des Artikels 97(1) EPÜ
zurückgewiesen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

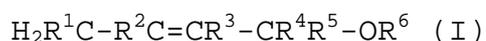
Vorsitzender: S. Perryman
Mitglieder: B. Struif
B. ter Laan

Sachverhalt und Anträge

I. Die europäische Patentanmeldung mit der Anmeldenummer 97119496.4 wurde am 7. November 1997 eingereicht und mit zehn Ansprüchen als EP-A2-0 841 090 veröffentlicht. Die unabhängigen Ansprüche 1 und 8 lauteten wie folgt:

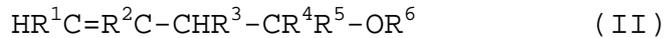
"1. Festbettkatalysator, der Palladium und Selen oder Tellur oder ein Gemisch aus Selen und Tellur auf einem Siliciumdioxidträger enthält und eine BET-Oberfläche von 80 bis 380 m²/g und ein Porenvolumen von 0,6 bis 0,95 cm³/g im Porendurchmesserbereich von 3 nm bis 300 µm aufweist, wobei 80 bis 95% des Porenvolumens im Porendurchmesserbereich von 10 bis 100 nm liegen.

"8. Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-Verbindungen der allgemeinen Formel (I)



in der die einzelnen Reste R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und R⁶ gleich oder verschieden sein können und jeweils ein Wasserstoffatom oder einen aliphatischen Rest, der gegebenenfalls mit OH, OR mit aliphatischem Rest R, Halogen, Carboxyl substituiert sein kann, bedeuten, darüber hinaus R² auch den Rest -CHO bezeichnen kann, R² und R⁵ zusammen mit den zwischen ihnen liegenden Kohlenstoffatomen auch Glieder eines alicyclischen Ringes bedeuten können, und R⁶ auch einen cycloaliphatischen, araliphatischen, aromatischen Rest oder den Rest -C(=O)-R⁷, in dem R⁷ einen aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Rest bedeutet, bezeichnen kann,

durch Isomerisierung von 3-Buten-1-ol-Verbindungen der allgemeinen Formel (II)



in der R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und R^6 die vorgenannte Bedeutung haben, in Gegenwart von Wasserstoff und einem Katalysator, dadurch gekennzeichnet, dass das Verfahren kontinuierlich an einem Festbettkatalysator nach einem der Ansprüche 1 bis 3 durchgeführt wird."

- II. Mit der am 27. Oktober 2004 zur Post gegebenen Entscheidung wies die Prüfungsabteilung die Anmeldung nach Artikel 56 EPÜ wegen mangelnder erfinderischer Tätigkeit zurück. Der Entscheidung lagen geänderte Ansprüche 1 bis 10 und ein Versuchsbericht, jeweils eingereicht mit Schreiben vom 1. April 2004, zu Grunde. Sie war auf folgenden Stand der Technik gestützt:

D1: EP-A-0 647 611

D2: DE-A-27 51 755

Der geänderte Anspruch 1 unterschied sich vom ursprünglich eingereichten Anspruch 1 dadurch, dass die Alternativen "oder Tellur oder ein Gemisch aus Selen und Tellur" gestrichen waren. Entsprechende Streichungen wurden in den Ansprüchen 2 und 4 vorgenommen.

- III. Zur Begründung der angefochtenen Entscheidung wurde im wesentlichen folgendes ausgeführt.

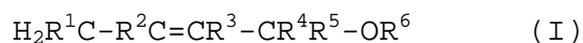
- a) Bei Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit werde D2 als nächstliegender Stand der Technik angesehen. Der Anspruch 1 unterscheide sich von D2 nur dadurch, dass

ein Siliciumdioxidträger mit spezieller BET-Oberfläche, Porenvolumen und Porendurchmesserbereich ausgewählt werde. Es sei nicht durch Vergleichsversuche belegt, dass diese Parameter zu einem besonderen technischen Effekt führten. Insbesondere liege kein Vergleich mit einem Siliciumdioxidträger vor, der andere Eigenschaften habe. Daher sei der Gegenstand von Anspruch 1 nicht erfinderisch. Das gleiche gelte für die anderen unabhängigen Ansprüche.

- IV. Am 16. Dezember 2004 legte die Anmelderin (Beschwerdeführerin) unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr gegen die Entscheidung der Prüfungsabteilung Beschwerde ein, die am 2. März 2005 begründet wurde. Mit der Beschwerdebegründung wurde ein weiterer Vergleichsversuch vorgelegt.
- V. Mit Bescheid vom 15. März 2007 nahm die Kammer insbesondere zur Frage der erfinderischen Tätigkeit Stellung, die im Rahmen der mündlichen Verhandlung diskutiert werden sollte.
- VI. Mit Eingabe vom 8. Juni 2007 reichte die Beschwerdeführerin einen geänderten Hauptantrag sowie einen Hilfsantrag ein.

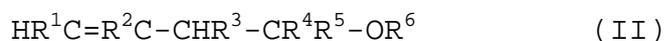
Anspruch 1 des Hauptantrags hat folgende Fassung:

"1. Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-Verbindungen der allgemeinen Formel (I)



in der die einzelnen Reste R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und R^6 gleich oder verschieden sein können und jeweils ein Wasserstoffatom oder einen aliphatischen Rest, der gegebenenfalls mit OH, OR mit aliphatischem Rest R, Halogen, Carboxyl substituiert sein kann, bedeuten, darüber hinaus R^2 auch den Rest -CHO bezeichnen kann, R^2 und R^5 zusammen mit den zwischen ihnen liegenden Kohlenstoffatomen auch Glieder eines alicyclischen Ringes bedeuten können, und R^6 auch einen cycloaliphatischen, araliphatischen, aromatischen Rest oder den Rest $-C(=O)-R^7$, in dem R^7 einen aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Rest bedeutet, bezeichnen kann,

durch Isomerisierung von 3-Buten-1-ol-Verbindungen der allgemeinen Formel (II)



in der R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und R^6 die vorgenannte Bedeutung haben, in Gegenwart von Wasserstoff und einem Katalysator, dadurch gekennzeichnet, dass das Verfahren kontinuierlich an einem Festbettkatalysator, der Palladium und Selen auf einem Siliciumdioxidträger enthält und eine BET-Oberfläche von 100 bis 150 m²/g und ein Porenvolumen von 0,8 bis 0,9 cm³/g im Porendurchmesserbereich von 3 nm bis 300 µm aufweist, wobei 85 bis 93% des Porenvolumens im Porendurchmesserbereich von 10 bis 100 nm liegen und der Katalysator 0,2 bis 0,8 Gew.-% Palladium und 0,02 bis 0,08 Gew.-% Selen, bezogen auf das Gesamtgewicht des Katalysators, enthält, durchgeführt wird."

- VII. Mit Ihrer Eingabe vom 23. Juli 2007 zog die Beschwerdeführerin ihren Antrag auf mündliche Verhandlung zurück und kündigte an, nicht an der mündlichen Verhandlung teilzunehmen.
- VIII. Die mündliche Verhandlung fand am 31. Juli 2007 in Abwesenheit der Beschwerdeführerin statt (Regel 71 (2) EPÜ).
- IX. Die schriftlich vorgebrachten Argumente der Beschwerdeführerin können wie folgt zusammengefasst werden:
- a) Für die Änderungen der Ansprüche des Hauptantrages wurde die Basis in den ursprünglichen Unterlagen angegeben.
 - b) Anspruch 1 des Hauptantrages unterscheide sich von D2 als nächstliegendem Stand der Technik dadurch, dass der Katalysator eine spezifische Menge Palladium und Selen enthalte und als Träger Siliziumdioxid, das eine spezifische BET-Oberfläche, ein bestimmtes Porenvolumen und einen bestimmten Porendurchmesserbereich aufweise, eingesetzt werde. Darüber hinaus werde das Verfahren kontinuierlich an einem Festbettkatalysator durchgeführt und es solle ein Verfahren mit weniger Hydrierprodukten und Leichtsiedern erzielt werden. Ausserdem werde durch die Verwendung eines spezifischen Siliziumdioxids die Aktivität des erfindungsgemäßen Katalysators signifikant erhöht, wie durch Vergleich mit einem Katalysator gezeigt sei, dessen Siliciumdioxid eine BET-Oberfläche und ein Porenvolumen außerhalb des beanspruchten Bereiches aufweise.

Zwar sei Kieselsäure ganz allgemein als geeigneter Träger nach D2 bekannt, jedoch finde sich kein Hinweis für die beanspruchte Auswahl der Menge der Katalysatorbestandteile auf dem Träger und der spezifischen Trägereigenschaften, so dass das beanspruchte Verfahren auch unabhängig von den nachgewiesenen Vorteilen gegenüber D2 nicht nahe gelegt und daher erfinderisch sei.

- X. Die Beschwerdeführerin hatte schriftlich beantragt, die Zurückweisung aufzuheben und ein Patent auf der Grundlage der mit Schreiben vom 8. Juni 2007 eingereichten Ansprüchen 1 bis 3 als Hauptantrag, oder, hilfsweise, auf der Grundlage des mit Schreiben vom 8. Juni 2007 eingereichten Anspruchs 1 zu erteilen.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.

Änderungen

2. Anspruch 1 des Hauptantrages geht auf den ursprünglichen Anspruch 8 in Verbindung mit den ursprünglichen Ansprüchen 1 und 3 zurück. Die Ansprüche 2 und 3 basieren auf den ursprünglichen Ansprüchen 9 beziehungsweise 10. Damit sind die Änderungen aus den ursprünglichen Unterlagen herleitbar und erfüllen die Voraussetzungen nach Art. 123(2) EPÜ. Die Änderungen sind darüber hinaus klar und nach Art. 84 EPÜ zulässig.

Neuheit

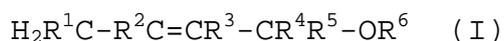
3. Die Neuheit des Anmeldungsgegenstandes wurde von der Prüfungsabteilung nicht in Zweifel gezogen und die Kammer hat auch keine Veranlassung, eine andere Auffassung zu vertreten, wie bei der nachstehenden Diskussion der erfinderischen Tätigkeit ersichtlich ist.

Erfinderische Tätigkeit

Aufgabe und Lösung

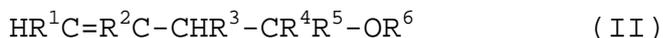
4. Die Prüfungsabteilung als auch die Beschwerdeführerin sind bei Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit von D2 als nächstliegenden Stand der Technik ausgegangen. Der Kammer ist kein näher stehender Stand der Technik bekannt, so dass sie keine Veranlassung sieht, einen anderen Ausgangspunkt zu wählen.

- 4.1 D2 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-Verbindungen der allgemeinen Formel (I)



in der die einzelnen Reste R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und R^6 gleich oder verschieden sein können und jeweils ein Wasserstoffatom oder einen aliphatischen Rest, der gegebenenfalls mit OH, OR, Halogen, Carboxyl substituiert sein kann, bedeuten, darüber hinaus R^2 auch den Rest -CHO bezeichnen kann, R^2 und R^5 zusammen mit den zwischen ihnen liegenden Kohlenstoffatomen auch Glieder eines alicyclischen Ringes bedeuten können, und/oder R^6 auch für einen cycloaliphatischen, araliphatischen, aromatischen Rest oder den Rest $-\text{C}(=\text{O})-\text{R}^7$, in dem R^7

einen aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Rest bedeutet, steht, durch Isomerisierung von 3-Buten-1-ol-Verbindungen der allgemeinen Formel II



in der R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und R^6 die vorgenannte Bedeutung haben, in Gegenwart von Palladium und/oder seinen Verbindungen und Wasserstoff bei Temperaturen von 0 bis 250°C , dadurch gekennzeichnet, dass man die Isomerisierung in Gegenwart von Selen und/oder Tellur und/oder deren Verbindungen als Co-Katalysatoren vornimmt (Anspruch 1).

- 4.2 Vorzugweise ist der Katalysator auf einen Träger, wie Aktivkohle, Bariumsulfat, Kieselgel, Aluminiumoxid oder Zeolith aufgebracht (Seite 7, Zeilen 9 bis 12). Der Katalysator enthält Palladium in einer Menge von 0,01 bis 5 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 2 Gew.-% (Seite 7 erster vollständiger Absatz). Der Co-Katalysator wird in einer Menge von 1 - 100 Gew.-%, vorzugsweise 2 bis 10 Gew.-%, bezogen auf das metallische Palladium eingesetzt (Seiten 7 und 8 überbrückter Absatz). In den Beispielen 1 bis 3 von D2 ist ein Katalysator beschrieben, der 0,25 Gew.-% Selen und 5% Gew.-% Palladium auf Aktivkohle enthält. Die Gewichtsprozentsätze liegen beide außerhalb des beanspruchten Bereiches. Die Katalysatoren der Beispiele 4 bis 6 enthalten Tellur als Co-Katalysator, wobei als Träger ein Aluminiumsilikat (Beispiel 4) oder Aktivkohle (Beispiele 5 und 6) verwendet wird. In keinem der Beispiele wird Kieselsäure oder ein kontinuierliches Verfahren verwendet. Das Verfahren von D2 kann generell

kontinuierlich und diskontinuierlich durchgeführt werden (Seite 8, letzter Absatz).

4.3 Somit offenbart D2 weder eine Kombination aus Palladium und Selen zusammen mit Kieselsäure in den beanspruchten Gewichtsprozentsätzen, noch die spezifische Oberfläche und Porenverteilung des Katalysators noch ein kontinuierliches Verfahren an einem Festbettkatalysator. Daher unterscheidet sich Anspruch 1 nicht nur durch die Auswahl des Trägers von D2.

5. Auch in der Streitpatentanmeldung ist D2 zitiert (ursprüngliche Seite 2, Zeilen 18 bis 26). Hiernach sollen bei der Doppelbindungsisomerisierung von substituierten Butanolen keine vollständigen Stoffumsätze erhalten werden. Insbesondere treten Hydriernebenprodukte auf, die nach D2 (Seite 3, erster Absatz, Seite 4 dritter Absatz) aus dem Verfahren ausgeschleust werden müssen, was die Wirtschaftlichkeit des Isomerisierungsverfahrens beeinträchtigt. Daher wurde die Aufgabe in den ursprünglichen Unterlagen darin gesehen, die Bildung von Hydriernebenprodukten und Leichtsiedern zu vermindern (Seite 3, Zeilen 11 bis 15). Es stellt sich zunächst die Frage, ob eine solche Aufgabe nach der Streitanmeldung als gelöst angesehen werden kann.

5.1 Nach Beispiel 1 wird ein Katalysator hergestellt, der auf Siliciumdioxid 0,5 Gew.-% Palladium und 0,05 Gew.-% Selen enthält. Die BET-oberfläche beträgt 119 m²/g und das Porenvolumen 0,82 cm³/g im Porendurchmesserbereich von 3 bis 300 µm. Von diesem Porenvolumen liegen 91,7% im Porendurchmesserbereich von 10 bis 100 nm. Diese

Merkmale erläutern somit den im Patentanspruch 1 verwendeten Festbettkatalysator.

- 5.2 In den Beispielen 2 bis 5 wurde der so hergestellte Katalysator in einem Rohrreaktor eingebaut und zur Isomerisierung von 3-Methyl-3-buten-1-ol verwendet und in einem kontinuierlichen Verfahren getestet. Aus den Ergebnissen geht hervor, dass das beanspruchte Verfahren zu Selektivitäten von 91,5, 93, 94 bzw. 92 bei Umsätzen von 55, 75, 55 bzw. 58% führt. Über die Verminderung der Hydriernebenprodukte gegenüber D2 geben jedoch weder die Beispiele noch die im Prüfungs- und Beschwerdeverfahren eingereichten Versuchsberichte Aufschluss. Bei Fehlen von entsprechenden Belegen kann eine Verminderung der Hydriernebenprodukte bei Formulierung der gegenüber dem Stand der Technik gelösten Aufgabe daher nicht berücksichtigt werden (Rechtsprechung der Beschwerdekammern des Europäischen Patentamtes 5. Auflage 2006, I.D.4.2).
- 5.3 Aus Beispiel 5 geht allerdings hervor, dass bei Umsetzungszeiträumen bis 1600 h Umsatz (58%) und Selektivität (92%) stabil bleiben. Hingegen wurde in den Beispielen von D2 mit völlig anders zusammengesetzten Katalysatoren lediglich die Bildung unerwünschter Hydriernebenprodukte in einem zweistündigen nicht-kontinuierlichen Test untersucht (siehe obigen Punkt 4.2). Demgemäß wurde in D2 der Langzeitaktivität der Katalysatoren in einem kontinuierlichen Verfahren keine Beachtung geschenkt. Da der in der Streitmeldung beschriebene und belegte technische Effekt in D2 nicht angesprochen ist, kann er bei Formulierung der Aufgabe berücksichtigt werden.

- 5.4 Die Prüfungsabteilung war der Auffassung, dass sich der der Entscheidung zu Grunde liegende Anspruch 1 nur durch die spezifische Auswahl des Trägers unterscheidet, so dass zur Begründung der erfinderischen Tätigkeit ein technischer Effekt belegt werden müsse, der nur auf dem Unterschied in der BET-Oberfläche, dem Porenvolumen und dem Porendurchmesserbereich beruhe.
- 5.5 Eine Kombination von Palladium und Selen in den beanspruchten Gewichtsprozentsätzen in Verbindung mit einem Kieselsäureträger und den spezifischen Poreneigenschaften des Katalysators ist jedoch aus D2 nicht zu entnehmen (siehe Punkt 4.3). Darüber hinaus ist Anspruch 1 des Hauptantrages gegenüber der der Entscheidung zu Grunde liegenden Fassung erheblich eingeschränkt worden und zudem nicht mehr auf einen Katalysator als solchen gerichtet, sondern auf ein kontinuierliches Verfahren an einem Festbettkatalysator zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-Verbindungen. Daher ist auch kein Vergleich notwendig, bei dem sich das Vergleichsbeispiel nur durch die spezifischen Merkmale des Siliciumdioxidträgers unterscheidet.
- 5.6 Da das beanspruchte kontinuierliche Verfahren und der damit erzielte technische Effekt in D2 nicht angesprochen sind, kann die gegenüber D2 als gelöst angesehene Aufgabe darin gesehen werden, ein Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von 2-Buten-1-ol Verbindungen zur Verfügung zu stellen, dessen hohe Selektivitäten und Umsätze über einen langen Umsetzungszeitraum stabil aufrechterhalten werden können.

Naheliegen

6. Während in der Beschreibung von D2 ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-Verbindungen durch Isomerisierung von 3-Buten-1-ol-Verbindungen generell erwähnt ist, wird in den Beispielen nur ein diskontinuierliches Verfahren beschrieben. Von den sechs Beispielen weisen fünf Katalysatoren Aktivkohle als Katalysatorträger auf und eines enthält Aluminiumsilikat als Träger. In D2 fehlt jeglicher Hinweis, welche Kombination von Katalysatorbestandteilen (Palladium und Selen) in welchen Mengen zusammen mit einem spezifischen Träger (Siliziumdioxid) und mit welchen speziellen Parametern für ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol-Verbindungen an einem Festbettkatalysator geeignet sein könnte, um einen hohen Umsatz und eine hohe Selektivität der gewünschten Produkte stabil über einen langen Zeitraum zu gewährleisten. Demgemäß wird der Fachmann durch die Lehre von D2 nicht angeregt, das bekannte Verfahren in Richtung auf die Erfindung abzuändern.
- 6.1 D1 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von ungesättigten Glykoldiestern durch Umsetzung eines konjugierten Diens mit einer Carbonsäure und molekularem Sauerstoff in Gegenwart eines Festbettkatalysators, der Palladium und Tellur als aktive Bestandteile auf einem Träger enthält, wobei der Träger ein fester Träger ist und der Anteil des Porenvolumens mit einem Porenradius im Bereich von 5 bis 50 nm 80% oder mehr, bezogen auf das Gesamtporenvolumen mit einem Porenradius im Bereich von 1,8 bis 10 000 nm, beträgt (Anspruch 1). Das Verfahren von D1 beschreibt allerdings kein Verfahren zur Herstellung von 2-Buten-1-ol Verbindungen durch

Isomerisierung von 3-Buten-1-ol Verbindungen und der dort verwendete Katalysator enthält auch kein Selen. Demgemäß beschreibt D1 ein vollständig anderes Syntheseverfahren und einen anders zusammengesetzten Katalysator und vermag daher auch keine Anregung zu vermitteln, das Verfahren nach D2 in Richtung auf den beanspruchten Gegenstand abzuändern.

- 6.2 Der übrige im Recherchebericht zitierte Stand der Technik liegt weiter ab.
- 6.3 Daher hat auch bei Zusammenschau des nachgewiesenen Standes der Technik der Anmeldungsgegenstand nicht nahe gelegen, so dass er auch die zur Patenterteilung erforderliche erfinderische Tätigkeit (Art. 56 EPÜ) aufweist.

Zurückverweisung

7. Da die Erteilung von der ersten Instanz durchzuführen ist, hält es die Kammer für zweckmäßig, wenn auch die erforderliche Anpassung der Beschreibung dort überprüft wird.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.

2. Die Angelegenheit wird an die erste Instanz mit der Auflage zurückverwiesen, ein Patent auf der Basis der mit Eingabe vom 8. Juni 2007 überreichten Ansprüche 1 bis 3 gemäß Hauptantrag und einer daran noch anzupassenden Beschreibung zu erteilen.

Geschäftsstellenbeamtin

Vorsitzender

E. Görgmaier

S. Perryman