



Europäisches Patentamt  
Beschwerdekammern

European Patent Office  
Boards of Appeal

Office européen des brevets  
Chambres de recours

Veröffentlichung im Amtsblatt	<del>Nein</del> /Nein
Publication in the Official Journal	<del>Yes</del> /No
Publication au Journal Officiel	<del>Oui</del> /Non

Aktenzeichen / Case Number / N<sup>o</sup> du recours : T 217/84  
Anmeldenummer / Filing No / N<sup>o</sup> de la demande : 78 100 975.8  
Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N<sup>o</sup> de la publication : 1971

19

Bezeichnung der Erfindung:  
Title of invention: Verfahren zur Herstellung von Hydroxyl-  
Titre de l'invention : ammoniumsalzen in Reaktionsgefäßen aus  
Edelstahl

Klassifikation / Classification / Classement : C 01 B 21/14

### ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du

24. Juni 1986

Anmelder / Applicant / Demandeur :

Patentinhaber / Proprietor of the patent /  
Titulaire du brevet :

BASF A.G.

Einsprechender / Opponent / Opposant :

N.V. DSM

Stichwort / Headword / Référence :

EPÜ / EPC / CBE

Art. 52(1) und 56 EPÜ  
"Erfinderische Tätigkeit - glücklicher Griff"  
"Diskrepanz zwischen Erwartungen aufgrund des  
Standes der Technik und deren experimentellen  
Überprüfung"

Leitsatz / Headnote / Sommaire

**Europäisches  
Patentamt**

Beschwerdekammern

**European Patent  
Office**

Boards of Appeal

**Office européen  
des brevets**

Chambres de recours



Aktenzeichen: T 217/84

**E N T S C H E I D U N G**  
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1  
vom 24. Juni 1986

**Beschwerdeführer:**  
(Einsprechender)

N.V. DSM  
van der Maessenstraat 2  
NL - 6411 LP Herlen

**Vertreter:**

Pinckaers, August René

**Beschwerdegegner:**  
(Patentinhaber)

Octrooibureau DSM  
NL - 6160 MA Geleen

BASF A.G.  
Carl-Bosch-Str. 38

D - 6700 Ludwigshafen

**Vertreter:**

**Angefochtene Entscheidung:** Entscheidung der Einspruchsabteilung  
des Europäischen Patentamts vom  
12. April 1984, abgesandt am  
9. Juli 1984, mit der der Einspruch  
gegen das europäische Patent Nr. 1971  
aufgrund des Artikels 102(2) EPÜ  
zurückgewiesen worden ist.

**Zusammensetzung der Kammer:**

**Vorsitzender:** Jahn

**Mitglied:** Szabo

**Mitglied:** Schulte

SACHVERHALT UND ANTRÄGE

- I. Auf die europäische Patentanmeldung 78 100 975.8, die am 25. September 1978 unter Inanspruchnahme der Priorität aus der Voranmeldung (DE 2 743 346) vom 27. September 1977 angemeldet worden ist, ist am 5. August 1981 das europäische Patent 1971 mit einem einzigen Anspruch erteilt worden. Der Anspruch lautet:

"Verfahren zur Herstellung von Hydroxylammoniumsalzen durch katalytische Reduktion von Stickstoffmonoxid mit Wasserstoff in verdünnten wäßrigen Mineralsäuren in Gegenwart von suspendierten Platinkatalysatoren bei erhöhter Temperatur, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung in Reaktionsgefäßen durchführt, deren Wandungen aus an sich bekannten, kupferfreien, molybdänhaltigen austenitischen Chrom-Nickel-Stählen bestehen, die einen Gehalt von 16 bis 28 Gew. % Chrom, 10 bis 50 Gew. % Nickel, 1 bis 4 Gew. % Molybdän, höchstens 0,05 Gew. % Kohlenstoff haben sowie zusätzlich bis zu 0,5 Gew. % Stickstoff enthalten, wobei der Rest, abgesehen von eventuellen Verunreinigungen, aus Eisen besteht".

- II. Gegen die Erteilung des europäischen Patents hat die Einsprechende am 22. April 1982 Einspruch eingelegt und den Widerruf des Patents wegen nicht ausreichender Offenbarung und mangelnder erfinderischer Tätigkeit beantragt. Zur Begründung hat die Einsprechende auf die Druckschrift

(a) Technical Information No. A 14 E, February 1973, Deutsche Edelstahlwerke A.G., Stahltechnologische Zentrale, Krefeld, verwiesen.

Zur Stützung ihrer Argumente bezieht sich die Patentinhaberin auf folgende Unterlagen:

(b) Firmenschrift der Cabot Corp. "Hastelloy alloy B 2", Stellite Division, Seiten 1 und 5,

(c) "Nitrogen No. 50" November/Dezember 1967, S. 30,

(d) Vergleichsbeispiel 4 eingereicht mit Schriftsatz vom 15.10.1979,

(h) Beständigkeit von nickelhaltigen Legierungen und Stählen gegenüber Schwefelsäure, Nickel-Informationsbüro, Seiten 31 und 35 (1959).

III. Durch Entscheidung vom 12. April 1984, abgesandt am 9. Juli 1984 hat die Einspruchsabteilung den Einspruch zurückgewiesen. In der Begründung wird zur erfinderrischen Tätigkeit ausgeführt, daß der Hinweis in (a), Remanit 4465 sei gegen Schwefelsäure unter reduzierenden Bedingungen korrosionsfest, keinen Schluß auf die Eignung dieses Edelstahls gerade für die Hydroxylamin-Synthese zulasse. Ferner gehe aus den Druckschriften (b), (e) und (d) i.V.m. Beispiel 2a des Streitpatents hervor, daß nicht alle gegen Schwefelsäure beständigen Werkstoffe für diese Synthese geeignet seien. Zudem habe ein Vorurteil gegen den patentgemäßen Vorschlag bei Ni-Cr-Mo-Stählen bestanden, weil diese gegen Schwefelsäure weniger beständig sind als das laut Vergleichsbeispiel 4 (d) ungeeignete Hastelloy und weil laut Druckschrift (c) Mo und Cr den für diese Synthese eingesetzten Katalysator ungünstig beeinflussen. Zudem wurde der Einspruchsgrund verworfen, der Patentgegenstand sei nicht ausreichend offenbart. Der Einwand, die wenigen Beispiele könnten nicht die Ausführbarkeit des Verfahrens

über den gesamten beanspruchten Bereich belegen, sei weder theoretisch noch experimentell begründet worden.

IV. Gegen diese Entscheidung hat die unterlegene Einsprechende am 6. September 1984 durch ein am 12. September 1984 bestätigtes Fernschreiben Beschwerde erhoben und diese am 8. November 1984 begründet. Die Beschwerdegebühr wurde am 12. September 1984 entrichtet. Als weitere Druckschriften wurden von der Beschwerdeführerin u.a. genannt:

(e) Report 8702, Cabot Corporation, Resistance of Hastelloy alloys., Dezember 1974,

(f) Hydroxylamine and Its Salts, Manuf. Chem. & Aerosol News, 1964, 35, pp. 29-32 und

(g) Corrosion Resistance of Stainless Steels in Aqueous Solutions, Avesta, 1967, S. 15 - 17.

(i) Corrosion Data Survey, 5. Ed., pp. 130/139.

Eine mündliche Verhandlung fand am 24. Juni 1986 statt, in der neue Unterlagen mit einem geänderten Anspruch überreicht wurden. Der geänderte Anspruch fügt dem erteilten Anspruch den folgenden Satzteil an: ". . . . . die etwa 200 Stunden dem Angriff des Reaktionsmediums unter Reaktionsbedingungen ausgesetzt waren." Der gleiche Satzteil ist in der Beschreibung, Spalte 2, Zeile 18, eingefügt worden.

V. Das Vorbringen der Beschwerdeführerin (Einsprechende) läßt sich etwa wie folgt zusammenfassen:

- (a) Die Begründung der Entscheidung der Einspruchsabteilung sei logisch nicht einwandfrei gewesen. Eine erfinderische Auswahl liege nicht schon dann vor, wenn nicht alle schwefelsäurefesten Werkstoffe für die Hydroxylaminsynthese geeignet seien. Wenn -wie hier - bereits die Wahl der patentgemäß vorgeschlagenen Stähle naheliege, so könne kein unerwarteter Vorteil diese Lehre mehr patentfähig machen.

Zudem sei das Argument eines bestehenden Vorurteils nicht haltbar, denn die Wahl eines unter den Synthesebedingungen korrosionsbeständigen Materials habe zur Folge, daß eben praktisch keine Metallionen in Lösung gingen, so daß eine Katalysatorvergiftung nicht zu befürchten sei.

- (b) Remanit 4465 sei unter oxidierenden und auch unter reduzierenden Bedingungen gegen Schwefelsäure beständig. Eine Passivierung (vgl. Sp. 3, Z. 47-55) sei nicht unerwartet, da aus Dokument (g) bekannt sei, daß unspezifizierte Ni-Cr-Mo-Stähle in Anwesenheit von oxidierenden Salzen schnell eine Passivierung zeigen. Dagegen sei Hastelloy B2 gemäß (b) nicht passiv und nicht passivierbar. Der Anspruch sei übrigens zu breit, weil gemäß (i) die austenitischen rostfreien Stähle gegen Perchlorsäure nicht widerstandsfähig seien.

VI. Die Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin) widerspricht diesem Vortrag im wesentlichen wie folgt:

- (a) Ausweislich (c) hätten Cr- und Mo-Stähle auf die Hydroxylamin-Synthese einen negativen Einfluß. Der Fachmann habe somit ein Vorurteil überwinden

müssen, um gerade Cr- und Mo-haltige Stähle für diese Synthese einzusetzen. Die Ansicht der Einsprechenden, wonach korrosionsbeständige Stähle nur vernachlässigbare Mengen an Metallionen an die Reaktionslösung abgeben, sei nicht belegt. Bereits bei einem Gehalt an 0,09 mg löslichem Mo/l  $H_2SO_4$  falle die produzierte Hydroxylaminmenge von 116,9 auf 100,1 g/l. Berücksichtige man noch, daß im kontinuierlichen Betrieb eine fortlaufende Anreicherung der Katalysatorgifte in der Lösung stattfinde, so sei es in der Tat überraschend, daß z.B. trotz Abtrags von 0,01 mm/Jahr an Werkstoff Nr. 14465 bei 6-monatigem Dauerbetrieb keine Beeinträchtigung der Katalysatoraktivität festzustellen sei (vgl. Beispiel 2).

- (b) Nicht alle gegen Schwefelsäure beständigen Werkstoffe seien bei der Hydroxylammoniumsynthese geeignet. Aus (b) gehe hervor, daß "Hastelloy B2", eine überwiegend Ni-haltige Legierung, gegen Schwefelsäure beständig ist. Doch gemäß (d) versage es unter den spezifischen Bedingungen der Hydroxylammonium-Herstellung.
- (c) Die Wandung des Reaktors müsse erst dem Angriff des Reaktionsmediums für ca. 200 Stunden ausgesetzt werden. Dabei trete unerwünschter Abtrag und Katalysatorbeeinträchtigung ein. Es sei dann überraschend, daß danach die Reduktion für eine sehr lange Zeit störungsfrei verläuft, mit einem Abtrag von weniger als 0,008 mm/Jahr (Beispiel 1).

VI. Die Beschwerdeführerin beantragt die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und den Widerruf des europäischen Patents. Die Beschwerdegegnerin beantragt, die

Beschwerde zurückzuweisen und das Patent im Umfang der in der mündlichen Verhandlung überreichten Unterlagen aufrechtzuerhalten.

#### ENTSCHEIDUNGSGRÜNDE

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 und Regel 64 EPÜ; sie ist daher zulässig.
2. Die geltende Fassung des Anspruchs ist in formeller Hinsicht nicht zu beanstanden. Das zusätzliche Merkmal stützt sich auf Spalte 3, Z. 47-52 und stellt eine wesentliche Bedingung für die Lösung der Aufgabe dar. Da die Aufnahme des zusätzlichen Merkmals eine Einschränkung des Schutzbereiches darstellt, entspricht die Änderung den Erfordernissen von Artikel 123 (2) und (3) EPÜ.
3. Das vorliegende Patent betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Hydroxylammoniumsalzen durch katalytische Reduktion von Stickstoffmonoxid mit Wasserstoff in verdünnten wäßrigen Mineralsäuren in Gegenwart von suspendierten Platinkatalysatoren bei erhöhter Temperatur. Dieses auf die Patentinhaberin zurückgehende Verfahren ist in (c) beschrieben (vgl. S. 27, linke Spalte, S. 28 rechts unten und S. 29). Außer dem Hinweis, das Verfahren gestatte den Einsatz preiswerten Konstruktionsmaterials (vgl. S. 29), finden sich über die Art möglicher Wirkstoffe keine Angaben. Die Problematik der Wahl von Werkstoffen angesichts der zu fordernden hohen Korrosionsbeständigkeit, mechanischer Festigkeit, leichter Verarbeitbarkeit und besonders der Nichtbeeinträchtigung der Reaktion durch in Lösung gehende Grundstoffe der Metallegierung ist in der Beschreibungseinleitung zum vorliegenden Patent ausführlich

erläutert (vgl. Spalte 1, Zeilen 27 - 54). Gegenüber diesem Stand der Technik bestand daher die technische Aufgabe, solche Werkstoffe anzugeben, die alle diese Forderungen erfüllen.

4. Diese Aufgabe wird nach dem Streitpatent dadurch gelöst, daß man die Umsetzung in Reaktionsgefäßen durchführt, deren Wandungen aus im Anspruch spezifisch definierten kupferfreien, molybdänhaltigen austenitischen Cr-Ni-Stählen bestehen, und die vor der Benutzung etwa 200 Stunden dem Angriff des Reaktionsmediums unter den Reaktionsbedingungen ausgesetzt waren. Nach der vorgeschlagenen Vorbehandlung von 200 Stunden sind sie auch korrosionsbeständig und vergiften den Platinkatalysator nicht (vgl. Beispiele 1 bis 3). Die Kammer ist daher überzeugt, daß die patentgemäße Aufgabe tatsächlich gelöst wird.

Es ist nicht streitig, daß das beanspruchte Verfahren im angezogenen Stand der Technik nicht vorbeschrieben, also neu ist.

5. Es ist daher zu untersuchen, ob die hier vorgeschlagene Lösung auf erfinderischer Tätigkeit beruht. Nachdem "Remanit 4465", dessen Zusammensetzung und Eigenschaften in (c) beschrieben sind, repräsentativ für die patentgemäß anzuwendenden Stahlsorten ist (vgl. Beispiel 2) stellt sich zunächst die Frage, ob es für den Fachmann nahelag, diese Sorte für den beanspruchten Zweck zu verwenden. Nach Dokument (a) soll Remanit 4465 "sehr widerstandsfähig gegen nicht oxidierende Säuren, z.B. gegen Schwefelsäure unter reduzierenden Bedingungen sein". Aus diesem allgemeinen, wenngleich wenig spezifischem Hinweis könnte der Schluß gezogen werden, daß sich diese Stahlsorte auch unter den reduzierenden

Bedingungen der Hydroxylammoniumsalz-Synthese gleichzeitig verhält. Wie voreilig solche Schlußfolgerungen wären, zeigen die späteren Ausführungen unter Abschnitt 8.

6. Ferner sollte das ausweislich (b) gegen Korrosion hervorragend beständige "Hastelloy B 2" insbesondere durch seine Resistenz gegen Schwefelsäure, die auch patentgemäß zu fordern ist, zur Lösung der bestehenden Aufgabe vorrangig geeignet sein, was jedoch durch die Praxis widerlegt wird (vgl. (d)). Dies zeigt, daß eine hohe Korrosionsbeständigkeit in Schwefelsäure noch nicht garantiert, daß die Hydroxylammoniumsalz-Synthese ohne schwerwiegende Beeinträchtigung verläuft.

Weiterhin berichtet (h) auf S. 31, daß die Zugabe von Molybdän und Kupfer die Beständigkeit von Cr-Ni-Stählen in Schwefelsäure wesentlich verbessert (vgl. dort die Fälle D, E und besonders F, mit A). Trotzdem ist ein Werkstoff, der F sehr ähnlich ist, für die Hydroxylammoniumsalzherstellung, d.h. schon bei 40 bis 60°C und 20%iger Schwefelsäure, wegen des erhöhten Abtrags ungeeignet (Vergleichsbeispiel 2a).

Im Gegensatz zu der nach (h) eigentlich zu erwartenden Verbesserungen durch erhöhten Kupfergehalt wendet die Erfindung eigens kupferfreie Legierungen an. Diese Beispiele führen vor Augen, daß die mit diesen Legierungen auf den ersten Blick verbundenen fachmännischen Erwartungen durch die Praxis nicht erfüllt werden. Angesichts dieser Diskrepanz zwischen Erwartungen und deren Überprüfung durch das Experiment war die patentgemäß vorgeschlagene Lösung der bestehenden Aufgabe nicht vorhersehbar. Diese konnte bei der Vielzahl der in

Betracht kommenden Werkstoffe nur durch glücklichen Griff gefunden werden.

7. Zwar wußte der Fachmann auch, daß oxidierende Bedingungen die Korrosionsbeständigkeit durch Passivierung günstig beeinflussen können (g). Normalerweise wirkt Hydroxylamin reduzierend und wird als Antioxidant verwendet, es zeigt aber in stark saurem Medium oxidierende Eigenschaften ((f), S. 29, rechte Spalte Mitte). Die Kammer ist nicht in der Lage, zu der von der Beschwerdeführerin vorgetragene Theorie der Passivierung durch Hydroxylamin Stellung zu nehmen. Dies ist auch nicht erforderlich, denn selbst wenn man die Theorie als zutreffend unterstellt, wird hierdurch die vorstehend dargestellte Diskrepanz zwischen Voraussage und Experiment nicht nachträglich erklärbar, so daß der Kreis aussichtsreicher Wirkstoffe vielleicht eingeschränkt werden könnte, vielmehr wird hierdurch die Zahl von spekulativen Prognosen eher vergrößert.
  
8. Vor allem darf die Information in (c), daß die Anwesenheit von Cr und Mo die Hydroxylammoniumsalz-Synthese in die Richtung auf die hier unerwünschte Bildung von Ammonium, d. h. auf eine weitergehende Reduktion lenkt, nicht außer Acht gelassen werden, wenn man Remanit 4465, das gerade diese Elemente enthält, in Betracht ziehen sollte. Es war daher keineswegs vorhersehbar, daß gerade diese Legierung den ungestörten Ablauf der Hydroxylammoniumsalz-Synthese neben den weiterhin aufgabengemäß angestrebten hochgesteckten Anforderungen ermöglichen würde. Aber selbst wenn man es als naheliegend ansehen sollte, dieses Material trotz solcher Bedenken und Ungewißheiten für den patentgemäßen Zweck einfach zu testen ("obvious to try"), so hätte der Fachmann die Testdauer nicht auf 200 Stunden ausgedehnt. Innerhalb

dieser Zeitgrenze zeigen sich aber trotz der behaupteten Korrosionsbeständigkeit nicht zu vertretende Abträge und Beeinträchtigungen, die den Fachmann jedenfalls vor Ablauf von 200 Stunden zum Abbruch seines Versuchs bewogen hätten. Daher hätte ein durchschnittlicher Fachmann das patentgemäße Verfahren auch dann nicht gefunden, wenn er auf gut Glück einschlägige Versuche angestellt hätte.

Der Gegenstand des geänderten Anspruchs beruht daher auf erfinderischer Tätigkeit.

9. Dem Argument, daß der beanspruchte Gegenstand nicht ausreichend gestützt sei, kann nicht zugestimmt werden. Die Beanstandung, daß bestimmte Legierungen gemäß des Patents in Perchlorsäure nicht korrosionsbeständig seien (vgl. (i)) wurde bei der Beschwerdegegnerin experimentell widerlegt.
  
10. Die Kammer hat von der Zustellung einer Aufforderung nach Regel 58(4) EPÜ abgesehen, da die Beteiligten zu der Änderung des europäischen Patents in der mündlichen Verhandlung ohne weiteres abschließend sachlich Stellung nehmen konnten (vgl. "Zeolite/BASF" T 219/83, AB1 7/1986, S. 211, Leitsatz II).

#### ENTSCHEIDUNGSFORMEL

Aus diesen Gründen wird wie folgt entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
  
2. Die Sache wird an die Vorinstanz zurückverwiesen mit der Auflage, das Patent im Umfang der in der mündlichen Verhandlung überreichten Unterlagen aufrechtzuerhalten.

Der Geschäftsstellenbeamte:

Der Vorsitzende:

gez. J. Ruckerl

gez. K. Jahn