

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



19

Aktenzeichen / Case Number / N° du recours : T 96/86
Anmeldenummer / Filing No / N° de la demande : 80 102 101.5
Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N° de la publication : 0 017 998

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von Isocyanurat-
Title of invention: gruppen enthaltenden Polyisocyanaten
Titre de l'invention :

Klassifikation / Classification / Classement : C 08 G 18/18

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du 16. September 1987

Anmelder / Applicant / Demandeur :

Patentinhaber / Proprietor of the patent / HÜLS AG
Titulaire du brevet :

Einsprechender / Opponent / Opposant : BASF

Stichwort / Headword / Référence :

EPO / EPC / CBE Art. 56

Kennwort / Keyword / Mot clé : "Erfinderische Tätigkeit (bejaht) -
Übertragung eines Katalysators auf
anderes Polymerisationsverfahren"

Leitsatz / Headnote / Sommaire

Europäisches
Patentamt

Beschwerdekammern

European Patent
Office

Boards of Appeal

Office européen
des brevets

Chambres de recours



Aktenzeichen: T 96/86

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 16. September 1987

Beschwerdeführer:
(Patentinhaber)

HÜLS AKTIENGESELLSCHAFT
Patentabteilung / PB 15
Postfach 13 20
D-4370 Marl 1

Vertreter:

Steil, Hanna, Dipl.-Chem.
RSP PATENTE - PB 15
Postfach 1320
D-4370 Marl 1

Beschwerdegegner:
(Einsprechender 01)

BASF Aktiengesellschaft
Carl-Bosch-Straße 38
D-6700 Ludwigshafen

Angefochtene Entscheidung:

Entscheidung der Einspruchsabteilung
des Europäischen Patentamts vom
27. Januar 1986, mit der das
europäische Patent Nr. 0 017 998
aufgrund des Artikels 102(1) EPÜ
widerrufen worden ist.

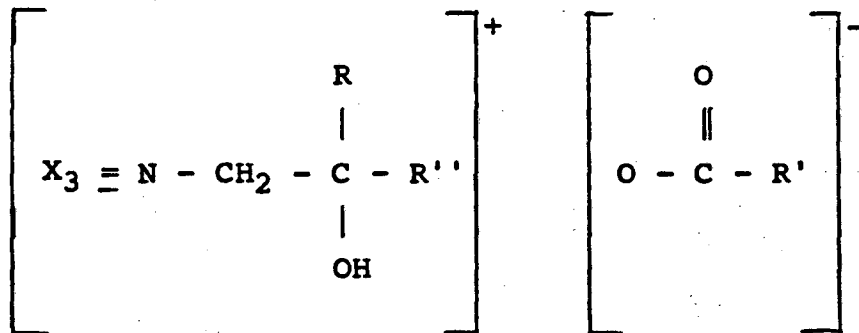
Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn
Mitglieder: F. Antony
R. Schulte

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die europäische Patentanmeldung 80 102 101.5, die am 18. April 1980 mit deutscher Priorität vom 21. April 1979 angemeldet worden war, wurde am 11. April 1984 das europäische Patent 17 998 auf der Grundlage von sechs Ansprüchen erteilt, deren einziger unabhängiger, wie folgt, lautete:

"Verfahren zur Herstellung von Isocyanuratgruppen enthaltenden Polyisocyanaten mit einem Gehalt an freien NCO-Gruppen zwischen 10 und 22 % und einem Restmonomergehalt von weniger als 0,7 % durch Trimerisierung von Diisocyanaten in Gegenwart von quarternären Ammoniumsalzen organischer Säuren der allgemeinen Formel



als Katalysator, in der X gleiche oder verschiedene aliphatische, cycloaliphatische, araliphatische oder heterocyclische Kohlenwasserstoffreste eines quarternären Ammonium-Stickstoffs sind oder 2X mit dem quarternären Stickstoff einen gegebenenfalls ein oder mehr Heteroatome enthaltenden Ring bzw. 3X über ein gemeinsames Heteroatom mit dem quarternären Stickstoff einen Ring bilden, R ein Rest aus der Gruppe Alkyl-, Cycloalkyl- und Aralkyl- sowie R + R'' gemeinsam ein C₄-C₇-Alkylrest, R' Wasserstoff

oder ein C₁-C₁₂-Alkylrest ist und R' = R oder Wasserstoff ist, dadurch gekennzeichnet, daß man den Trimerisierungskatalysator in einer Menge von 0,02 bis 0,1 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der zu trimerisierenden Verbindung einsetzt und die Trimerisierung in einem Temperaturbereich von 40-120°C, vorzugsweise 60-90°C, nur bis zu einem Umsatz von 45% durchführt, die Reaktion abbricht und das unumgesetzte Di-isocyanat durch Dünnschichtverdampfung entfernt."

II. Gegen die Patenterteilung legte die jetzige Beschwerdegegnerin am 19. Dezember 1984 wegen fehlender erfinderischer Tätigkeit Einspruch ein. Sie stützte sich insbesondere auf die folgenden Dokumente:

- (1) US-A- 4 040 992,
- (3) DE-A- 2 644 684 sowie die nachveröffentlichten
- (5) DE-A- 2 806 731 = EP-A- 3 765 (5a).

III. Durch Entscheidung vom 27. Januar 1986 widerrief die Einspruchsabteilung das Patent und führte dazu im wesentlichen das Folgende aus:

Die Erfindung sei - unstreitig - neu; sie beruhe aber nicht auf erfinderischer Tätigkeit. Ausgehend von (3) als nächstliegendem Stand der Technik sei es Aufgabe der Erfindung gewesen, ein weiteres Verfahren zur partiellen Isocyanat-Trimerisierung, unter Verwendung anderer Aminokatalysatoren bereitzustellen. Es liege auf der Hand, die strukturell ähnlichen aus (1) bekannten Katalysatoren beim Verfahren gemäß (3) auf ihre Eignung zu prüfen; das Auffinden der übrigen kennzeichnenden Merkmale sei fachliche Routine gewesen.

IV. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin (Patentinhaberin) am 13. März 1986 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde erhoben

und diese am 23. April 1986, etwa wie folgt, begründet: Die Einspruchsabteilung habe wesentliche Unterschiede zwischen dem Streitpatent und dem nächstliegenden Stand der Technik nach (3) übersehen, nämlich eine viel kürzere Reaktionszeit und eine kontinuierliche (statt chargenweise) partielle Trimerisierung. Aufgabe der Erfindung sei es gewesen, ein technisch einwandfrei funktionierendes kontinuierliches Verfahren für die partielle Trimerisierung von IPDI (d.h. 3-Isocyanatomethyl-3,5,5-trimethylcyclohexylisocyanat) vorzuschlagen. Diese Aufgabe sei in dem nächstliegenden Stand der Technik (3) nicht gelöst, da die Abtrennung des nicht umgesetzten IPDI zu ständigen Störungen in der Dünnschichtdestillationsanlage führe. Außerdem bestreitet die Beschwerdeführerin die Ausführungen der Einspruchsabteilung, wonach es naheliegend gewesen sei, die Katalysatoren von (1) auf ihre Eignung als Trimerisationskatalysatoren für cycloaliphatische Isocyanate zu prüfen. Der Hinweis, daß aliphatische Diisocyanate, speziell IPDI, schwierig zu trimerisieren sind, sei in mehreren Literaturstellen zu finden, so daß es sich für den Fachmann verbiete, einen für die Trimerisierung von Phenylisocyanat in einer Menge von 1-2% eingesetzten Katalysator für die Trimerisierung von IPDI auszuprobieren. Die Beschwerdeführerin hat letztlich einen neuen Anspruch 1 vorgelegt, der auf die kontinuierliche Trimerisierung in einer Reaktionsschlange zur Herstellung (cyclo)aliphatischer Polyisocyanurate beschränkt ist.

- V. Die Beschwerdegegnerin (Einsprechende) bestreitet die Ausführungen der Beschwerdeführerin. Sie weist insbesondere auf die Tatsache hin, daß IPDI *expressis verbis* in (1) genannt sei und daß ein Strömungsrohr als glatt äquivalent zu einer Kaskade anzusehen sei. Außerdem legt sie zur Stützung ihrer Argumentation zwei neue Dokumente vor, nämlich
- (6) DE-A-2 325 826 und
 - (7) Adolphi, Grundzüge der Verfahrenstechnik (1970), S. 268.

- VI. Die Beschwerdeführerin beantragt die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und die Aufrechterhaltung des Patents auf der Basis des Anspruchs 1 vom 29. November 1986 sowie der erteilten Ansprüche 4 - 6 als neuen Ansprüchen 2 - 4, wie in Reinschrift am 23. Mai 1987 vorgelegt. Die Beschwerdegegnerin beantragt hingegen, die Beschwerde zurückzuweisen.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 sowie Regel 64 EPÜ; sie ist daher zulässig.
2. Zur formalen Zulässigkeit des Anspruches 1 ist folgendes festzustellen:
 - 2.1. Anspruch 1 geltender Fassung ist gegenüber der erteilten Form durch Einbeziehung zusätzlicher Merkmale eingeschränkt, die sich aus den Erstunterlagen und der erteilten Fassung, wie folgt, rechtfertigen:
 - "kontinuierliche Herstellung" aus Seite 12, Zeile 15, bis Seite 16 unten (Beispiele 1 bis 24), bzw. Seite 5, Zeile 59, bis Seite 9 unten (Beispiele 1 bis 24);
 - "(cyclo)aliphatische Polyisocyanate" aus den Ansprüchen 6 und 7 bzw. 4 und 5 sowie aus Seite 9, Zeile 18, bzw. Seite 4, Zeile 40; wegen der Abhängigkeit der geltenden Ansprüche 2 und 3 ist hinreichend klar, daß dieser Ausdruck sowohl aliphatische als auch cycloaliphatische Polyisocyanate umfassen soll;
 - "in einer Reaktionsschlange" aus Seite 7, Zeilen 27 - 29, bzw. Seite 4, Zeilen 5 und 6.

Es bestehen deshalb keine Bedenken im Hinblick auf Artikel 123 (2) und (3) EPÜ.

- 2.2. Auch der Ausdruck "bis zu einem Umsatz von 45 %" (Anspruch 1, drittletzte bis vorletzte Zeile) ist nach Auffassung der Kammer im Hinblick auf die Beschreibung hinreichend klar, da dort wiederholt von einem Umsatz von "ca. 35 -45 %" gesprochen wird (insbesondere Seite 6, Zeile 6 der Patentschrift, entsprechend Erstunterlagen Seite 13, Zeile 5). Der Ausdruck "bis zu ... 45 %" ist daher im Sinne von "bis ... höchstens 45 %" zu verstehen.
3. Als nächstliegender Stand der Technik ist nach Auffassung der Kammer die Entgegenhaltung (3) anzusehen. Diese bezieht sich ebenso wie das Streitpatent auf ein Verfahren zur Herstellung von partiell trimerisierten aliphatischen und cycloaliphatischen Isocyanaten, wie IPDI, und zwar in Gegenwart von 0,1 bis 1 Gew.-% eines Katalyatorsystems Olefinoxid/N,N'-Endoäthylenpiperazin (Dabco). Man arbeitet dort bei Temperaturen von 80 -200°C, vorzugsweise 120 - 180°C, bricht die Reaktion bei einem Umsatz von 50 % ab und entfernt das unumgesetzte Diisocyanat sowie den Katalysator aus dem Reaktionsgemisch durch Dünnschichtdestillation (Ansprüche 1 und 3; Seite 3, Zeilen 7 bis 4 von unten; Beispiele 1 und 2). Dieses Verfahren hat nach den derzeit unwiderlegbaren und auch unbestrittenen Ausführungen der Beschwerdeführerin den Nachteil, daß es bei der Abtrennung des IPDI in regelmäßigen Abständen von ca. 1 - 2 Wochen zu Ablagerungen und Verstopfungen in den Destillationsleitungen kommt, und was noch gravierender ist, sogar im Öl der Vakuumpumpen eine Verharzung stattfindet.
4. Demgegenüber kann die dem Streitpatent zugrundeliegende Aufgabe darin gesehen werden, ein Verfahren zur partiellen Trimerisierung von (cyclo)aliphatischen Isocyanaten mit problemloser Isolation des Reaktionsproduktes anzugeben.

Zur Lösung dieser Aufgabe schlägt das Streitpatent im wesentlichen die Kombination folgender Maßnahmen vor:

(A) die Verwendung der speziellen, durch die Formel des Anspruchs 1 definierten, aus (1) bereits bekannten Aminokatalysatoren

(B) in einer Menge von 0,02 bis 0,1 Gew.-%,

(C) Umsetzung in einer Reaktionsschlange

(D) im Temperaturbereich von 40 - 120°C

(E) bis zu einem Umsatz von 45 Gew.-%.

5. Daß die bestehende Aufgabe durch die genannten Maßnahmen auch tatsächlich gelöst wird, erscheint auf Grund der Beispiele (Tabelle IIa, Seiten 7, 8 und Tabelle IIb, Seite 9) des Streitpatents glaubhaft. Die Beschwerdegegnerin hat diesbezüglich auch keine Einwendungen vorgebracht.

6. Das beanspruchte Verfahren ist keinem der entgegengestellten Dokumente zu entnehmen, somit neu. Da die Neuheit auch unbestritten ist, erübrigen sich nähere Ausführungen hierzu.

7. Es ist daher zu untersuchen, ob das beanspruchte Verfahren auf erfinderischer Tätigkeit beruht oder ob es für den Fachmann, der sich - ausgehend von (3) - die oben angegebene Aufgabe gestellt hatte, auf Grund des Standes der Technik nahelag.

7.1. Merkmal A:

7.1.1. Daß (cyclo)aliphatische Isocyanate schwieriger zu trimerisieren sind als aromatische, ist als gesicherter Wissensstand zu betrachten. So erwähnt (3) auf Seite 2, Zeilen 18 bis 22, daß zwar "tert. Amine sehr gut die Trimerisierung von aromatischen Isocyanaten katalysieren, bei

aliphatischen oder cycloaliphatischen Isocyanaten ... (jedoch) keinen katalytischen Effekt zeigen". Auch mit dem speziellen System Dabco gelingt nach der Lehre von (3) die Trimerisierung (cyclo)aliphatischer Isocyanate nur unter besonderen Bedingungen (Seite 3, Zeile 1, bis Zeile 10 von unten). Hinweise auf Schwierigkeiten bei der Trimerisierung cycloaliphatischer im Gegensatz zu aromatischen Isocyanaten sind auch einigen anderen, von der Beschwerdeführerin genannten Dokumenten zu entnehmen; siehe z.B. GB-A-1 386 399 (Seite 1, Zeilen 17 bis 25) und selbst noch die DE-A-3 219 608 (Seite 7, Zeilen 15 bis 20) und EP-A-155 559 (Seite 1, Zeilen 17 bis 21), deren Prioritätsdaten Jahre nach dem Veröffentlichungsdatum der dem Streitpatent zugrundeliegenden Anmeldung liegen.

7.1.2. Dokument (1) beschreibt zwar schon die Verwendung quaternärer Hydroxyalkylammonium-carboxylat-Katalysatoren - wie sie gemäß Streitpatent vorgeschlagen werden - für die Polymerisation und Polykondensation organischer Isocyanate ganz im allgemeinen. Dabei stehen wohl ganz eindeutig aromatische Isocyanate als Ausgangsstoffe im Vordergrund: so verwenden sämtliche Beispiele, die die Polymerisationsreaktion betreffen (beginnend mit Beispiel 19 in Spalte 14), Ausgangsstoffe, deren Isocyanatgruppe an einen aromatischen Ring gebunden ist. Dennoch heißt es in Spalte 17, Zeilen 49 bis 52, ausdrücklich, daß die genannten Katalysatoren auch zur Trimerisierung aliphatischer Isocyanate verwendbar sind, denen - wie aus den dort angeführten Beispielen ersichtlich - auch die cycloaliphatischen zugerechnet werden.

7.1.3. Dieser Lehre ist jedoch nach Meinung der Kammer keine Anregung zu entnehmen, diese aus (1) bekannten reaktiven Katalysatoren gerade zur Lösung der oben definierten Aufgabe im Verfahren gemäß (3) einzusetzen; denn für ein

kontinuierliches Verfahren zur partiellen Trimerisierung von (cyclo)aliphatischen Isocyanaten ist die Verwendung eines reaktiven Katalysators keineswegs die einzige Voraussetzung, und daß die in Abschnitt 3 erwähnten Probleme bei der Isolation des Reaktionsproduktes durch Verwendung der aus (1) bekannten Katalysatoren im Verfahren nach (3) vermieden werden könnten, war auf Grund des gesamten vorliegenden Standes der Technik für den Fachmann nicht zu erwarten.

7.1.4. Diese Beurteilung wird übrigens auch durch die in dem nachveröffentlichten Dokument (5) enthaltene Würdigung der aus (1) - bzw. der entsprechenden DE-A-2 631 733 (1a) - bekannten Katalysatoren zusätzlich gestützt. Es heißt nämlich in (5) auf Seite 4, 2. Absatz, die in (1a) genannten Katalysatoren seien "für eine derartige Umsetzung wenig geeignet, da die Verbindungen thermisch nicht leicht zerstörbar sind und daher beim gewünschten Trimerisierungsgrad durch Zugabe eines Katalysatorengifts desaktiviert werden müssen, was wiederum zu unerwünschten Verunreinigungen im Verfahrensprodukt führt".

7.1.5. Hieran vermag auch der auf (6) gestützte Hinweis auf Seite 2, Absatz 2, der Beschwerdeerwiderung vom 3.9.86 nichts zu ändern, wonach die unterschiedliche Reaktivität der NCO-Gruppen in IPDI einen selektiven Aufbau der Isocyanurate mit den Vorteilen der guten Steuerung der Reaktionsführung, niedriger Viskosität der Endprodukte sowie geringer Monomeranteile gestatte. Dieser Hinweis liegt nach Meinung der Kammer neben der Sache; denn ein wie auch immer gearteter Zusammenhang mit der im Streitpatent beanspruchten Aufgabenlösung ist nicht erkennbar.

7.2. Merkmal B: Einleitend sei bemerkt, daß es beim Vorschlag eines - wie ausgeführt - nicht naheliegenden Katalysators

nicht mehr darauf ankommen kann, in welcher Menge er wirksam sein könnte. Nachdem dieser Punkt jedoch im Vorverfahren eine Rolle spielte, sei hierzu das Folgende bemerkt:

- 7.2.1. Von den erforderlichen Katalysatormengen heißt es in (1), Spalte 18, Zeilen 16 bis 19, daß "für die Herstellung von Triphenylisocyanurat und anderer trimerisierter carbocyclischer Isocyanate" (also auch cycloaliphatischer; von offenkettigen aliphatischen ist an dieser Stelle nicht die Rede) etwa 1 bis 2 Prozentteile, bezogen auf das Isocyanat, eingesetzt werden "können".
- 7.2.2. Angesichts dieser Angaben und der gemäß Unterabschnitten 7.1.1 und 7.1.2 in der Fachwelt weit verbreiteten Meinung, daß (cyclo)aliphatische Isocyanate nur schwierig und - falls überhaupt - eher unter Verwendung höherer Katalysatorkonzentrationen als für aromatische Isocyanate trimerisierbar sind, kann der auf Seite 8, Absatz 5, der angefochtenen Entscheidung geäußerten Auffassung nicht gefolgt werden, wonach "die Bestimmung der optimalen Katalysatorkonzentration zur Routine des Fachmanns" gehöre und er sich "durch eine bloße Empfehlung" (dies zielt auf das Wort "may" in Spalte 18, Zeile 17, von (1) ab; vgl. Seite 8, Absatz 4, der angefochtenen Entscheidung) "hier- von nicht abhalten lassen" werde. Vielmehr wären - wenn überhaupt - zur Trimerisierung (cyclo)aliphatischer Isocyanate allenfalls Katalysatorkonzentrationen eher im oberen Teil des angegebenen Bereichs von 1 bis 2%, keinesfalls aber ein bis zwei Zehnerpotenzen unterhalb dieses Bereichs, wie patentgemäß vorgesehen (0,02 bis 0,1 Gew.-%), in Betracht gekommen.
- 7.2.3. Auch Merkmal B kann also nicht nahegelegen haben.

7.3. Lagen die Merkmale A und B, je für sich genommen, nicht nahe, so gilt dies erst recht für die Kombination dieser Merkmale miteinander. Bei dieser Sachlage kommt es nicht mehr darauf an, ob auch die Merkmale C, D und E zur erfinderischen Tätigkeit beitragen. Diese liegt schon auf Grund der obigen Ausführungen zu den Merkmalen A und B vor. Daher erübrigt sich auch ein Eingehen auf die unter Heranziehung von (7) gemachten Ausführungen auf Seite 2, Absatz 3, und Seite 3, Absatz 1, der Beschwerdeerwiderung vom 3.9.86.

8. Die geltenden Ansprüche 2 bis 4 werden von der Patentfähigkeit des Anspruchs 1 getragen.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Die Sache wird an die erste Instanz zurückverwiesen, mit der Auflage, das Patent mit den folgenden Unterlagen aufrechtzuerhalten:
 - Anspruch 1, erstmals eingegangen am 29. November 1986;
 - Ansprüche 2 bis 4, eingegangen am 23. Mai 1987;
 - einer noch anzupassenden Beschreibung.

Der Geschäftsstellenbeamte:

Der Vorsitzende:



02945

