

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



Aktenzeichen / Case Number / N° du recours : T 49/88 - 3.3.1

Anmeldenummer / Filing No / N° de la demande : 82 102 730.7

Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N° de la publication : 0 063 271

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von aromatischen
Title of invention: Amino-sulfonsäuren
Titre de l'invention :

Klassifikation / Classification / Classement : C 07 C 143/58

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du 4. April 1989

Anmelder / Applicant / Demandeur :

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

Einsprechender / Opponent / Opposant : CIBA-GEIGY AG

Stichwort / Headword / Référence :

EPÜ / EPC / CBE Art. 56

Schlagwort / Keyword / Mot clé : "Erfinderische Tätigkeit (nach Einschränkung
anerkannt)"

Leitsatz / Headnote / Sommaire

Europäisches
Patentamt

European Patent
Office

Office européen
des brevets

Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

Aktenzeichen: T 49/88 - 3.3.1



ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 4. April 1989

Beschwerdeführer:
(Patentinhaber)

BAYER AG
Konzernverwaltung RP
Patentabteilung
D-5090 Leverkusen 1

Vertreter:

Beschwerdegegner:
(Einsprechender)

CIBA-GEIGY AG
Patentabteilung
CH-4002 Basel

Vertreter:

Patentanwälte
TER MEER - MÜLLER - STEINMEISTER
Mauerkircherstraße 45
D-8000 München 80

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Einspruchsabteilung des Europäischen Patentamts vom 12. Januar 1988,, mit der das europäische Patent Nr. 0 063 271 aufgrund des Artikels 102(1) widerrufen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn
Mitglieder: R. Spangenberg
C. Payraudeau

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die am 31. März 1982 unter Beanspruchung der Priorität einer Voranmeldung in der Bundesrepublik Deutschland vom 11. April 1981 eingereichte europäische Patentanmeldung 82 102 730.7 wurde das europäische Patent 63 271 aufgrund von sieben Patentansprüchen erteilt. Der Hinweis auf die Patenterteilung wurde im Patentblatt 84/50 am 12. Dezember 1984 veröffentlicht.
- II. Gegen die Erteilung dieses Patents wurde am 11. September 1985 ein auf neue Druckschriften gestützter Einspruch eingelegt und Widerruf des Patents wegen mangelnder erfinderischer Tätigkeit beantragt.
- III. Die Einspruchsabteilung hat mit Entscheidung vom 12. Januar 1988 das Patent widerrufen. Dieser Entscheidung lag der folgende Hauptanspruch zugrunde:

"Verfahren zur Herstellung von Amino-arylsulfonsäuren durch Umsetzung von Arylaminen mit Schwefelsäure nach dem sogenannten Backverfahren bei einer Temperatur von mindestens 140 °C, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung mindestens teilweise in Gegenwart von Wasser unter Druck durchführt."

Sie hat die Entgegnung

(2) Fiat N 87 Frames 4648-60 (1933) Seiten 1 - 12

als nächstliegenden Stand der Technik angesehen und ausgeführt, daß es aus dieser Druckschrift bereits bekannt war, zur Vermeidung unerwünschter Disulfierung die Reaktion mindestens teilweise in Gegenwart von Wasser durchzuführen.

Demgegenüber habe nur noch die Aufgabe bestanden, die Raum-Zeit-Ausbeute zu erhöhen. Die Lösung dieser Aufgabe durch Arbeiten bei höherer Temperatur und unter Überdruck habe aufgrund des allgemeinen Fachwissens nahegelegen.

- IV. Am 23. Januar 1988 wurde gegen diese Entscheidung unter gleichzeitiger Einzahlung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde eingelegt, die am 14. April 1988 begründet wurde. In der mündlichen Verhandlung am 4. April 1989 hat die Beschwerdeführerin neue, eingeschränkte Patentansprüche vorgelegt. Der einzige unabhängige Patentanspruch hat folgenden Wortlaut:

"Verfahren zur Herstellung von Amino-arylsulfonsäuren durch Umsetzung von Arylaminen mit Schwefelsäure in Gegenwart eines Lösungsmittels nach dem sogenannten Backverfahren bei einer Temperatur von 140°C bis 280°C, dadurch gekennzeichnet, daß bei der Umsetzung im Reaktionsabschnitt, in dem 70 bis 100 % des gesamten Reaktionsumsatzes erzielt werden, Wasser in einer solchen Menge entfernt wird, daß stets 0,02 bis 2 Mol Wasser pro Mol ursprünglich in das Reaktionsgemisch eingebrachten Amins im Reaktionsansatz verbleibt, und die Umsetzung im Druckbereich zwischen dem Partialdampfdruck des Lösungsmittels unter den Bedingungen des Verfahrens und dem maximal möglichen Druck des Reaktionssystems durchgeführt wird, wobei man unter einem Druck von 1,1 bis 50 bar arbeitet."

Mit dem Verfahren gemäß dem angegriffenen Patent würden - so hat die Beschwerdeführerin vorgetragen - Produkte hoher Reinheit in überraschend hohen Raum-Zeit-Ausbeuten erhalten. Vor dem Prioritätstag des angegriffenen Patents sei es anerkannte Meinung der Fachwelt gewesen, daß beim Backverfahren zur Sulfonierung von Arylaminen in industriellem Maßstab das Reaktionswasser rasch und restlos

zu entfernen sei. Der erfindungsgemäße Vorschlag, hierbei Überdruck anzuwenden, der dies verhindern müsse, sei daher nicht naheliegend, sondern mit einem Vorurteil belastet. Dies gelte auch gegenüber

(6) DE-A-2 439 297,

bei dem ohne Lösungsmittel gearbeitet wird (sogenanntes "trockenes Backverfahren"). Der zum Überwinden des Druckverlustes in der Apparatur erforderliche geringe Überdruck von wenigen mbar könne dabei außer Betracht bleiben.

Die Wertung der Einspruchsabteilung, das Arbeiten unter Überdruck sei eine zwangsläufige Folge der zur Beschleunigung der Umsetzung erforderlichen höheren Reaktionstemperatur lasse außer Acht, daß der Fachmann nach dem Stande der Technik die gewünschte Temperaturerhöhung eher durch Wahl eines höher siedenden Lösungsmittels angegangen hätte. Die in (2) erreichte höhere Selektivität sei durch sehr lange Reaktionszeiten und hohe Salzlasten im Abwasser teuer erkauft. Gemäß

(7) Fiat N 87 Frames 4689-93 (1933), Seiten 1-5

sei vorgeschlagen worden, den Umsatz durch Erhöhen der Schwefelsäurekonzentration und nicht etwa durch Anwendung von Druck zu erhöhen.

- V. Nach Auffassung der Beschwerdegegnerin, die an der mündlichen Verhandlung nicht teilgenommen hat, unterscheidet sich das Verfahren gemäß dem angegriffenen Patent vom Stande der Technik nur durch das Arbeiten unter Überdruck; denn Wasser sei auch bei den bekannten Verfahren (z.B. nach (6)) zwangsläufig immer vorhanden, da es während der Reaktion laufend entstehe. Im übrigen werde auch beim Verfahren nach

dem angegriffenen Patent das Reaktionswasser ständig entfernt. Außerdem sei bei (6) der Gegendruck in der Apparatur zu überwinden, d. h. auch ein geringer Überdruck zwangsläufig verwirklicht.

- VI. Die Beschwerdeführerin beantragt, die angefochtene Entscheidung aufzuheben und das Patent auf der Grundlage der in der mündlichen Verhandlung überreichten Patentansprüche aufrechtzuerhalten.

Die Beschwerdegegnerin hat zuletzt beantragt, nach Aktenlage zu entscheiden.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde genügt den Anforderungen der Art. 106 bis 108 EPÜ und der Regel 64. Sie ist daher zulässig.
2. Die geltenden Patentansprüche entsprechen den Erfordernissen des Art. 123 (2) und (3) EPÜ, da sie von den ursprünglichen Anmeldungsunterlagen gestützt werden und gegenüber den erteilten Patentansprüchen eingeschränkt sind. Anspruch 1 findet seine Grundlage in den ursprünglichen und erteilten Ansprüchen 1 bis 3 in Verbindung mit den Angaben auf Seite 10, Zeilen 16 bis 18 und 22 bis 26 sowie Seite 11, Zeilen 1 bis 6 der ursprünglichen Beschreibung (entsprechend Seite 4, Zeilen 61 und 62, Seite 4, Zeile 64 bis Seite 5, Zeile 2 und Seite 5, Zeilen 4 bis 7 der Patentschrift). Die Patentansprüche 2 bis 5 entsprechen den ursprünglichen und erteilten Patentansprüchen 4 bis 7.
3. Keine der entgegengehaltenen Druckschriften beschreibt ein Backverfahren zur Herstellung von Amino-arylsulfonsäuren, bei dem in einem Lösungsmittel unter einem Druck von

mindestens 1,1 bar gearbeitet wird. Der Gegenstand der geltenden Patentansprüche ist somit neu. Nähere Ausführungen hierzu erübrigen sich, da dieser Sachverhalt nicht bestritten wurde.

4. Es ist daher zu untersuchen, ob dieser Gegenstand auch auf erfinderischer Tätigkeit beruht.

4.1 Gemäß der Beschreibungseinleitung in (6) gibt es zwei industriell genutzte Varianten des sogenannten Backverfahrens zur Herstellung von Arylamino-sulfonsäuren, nämlich einmal das "trockene" Verbacken einer Schmelze von Arylamino-sulfat und zum anderen das Verbacken dieses Sulfats in einem hochsiedenden Lösungsmittel. Weiter ist aus (6) zu entnehmen, daß beim "trockenen" Verbacken die Anwesenheit von Sauerstoff sorgfältig ausgeschlossen und die Temperatur sehr genau kontrolliert werden muß, um Verfärbungen des Produkts zu vermeiden. Als nachteilig beim Verbacken in einem Lösungsmittel wird die lange Reaktionszeit und die Notwendigkeit der Wiedergewinnung des Lösungsmittels angesehen. In (6) werden Maßnahmen vorgeschlagen, durch die die Nachteile beim "trockenen" Verbacken vermieden werden.

Demgegenüber betrifft das angegriffene Patent die Verbackung in einem Lösungsmittel. Die Kammer geht daher davon aus, daß die in der Beschreibung (Beispiel 1 und 3) dargestellten bekannten Verfahren den nächstvergleichbaren Stand der Technik bilden. Danach wird das Arylamin (Anilin) mit Schwefelsäure unter Normaldruck in einem inerten Lösungsmittel, z. B. 1,2-Dichlorbenzol, zum Sieden erhitzt und das entstehende Reaktionswasser mit dem Lösungsmittel abdestilliert und mittels eines Wasserabscheiders entfernt. Die Reaktionszeit beträgt acht Stunden und mehr. Das

Reaktionsprodukt (p-Sulfanilsäure) enthält mehr als 2 % Disulfonsäure und ist dunkel gefärbt. Die Ausbeuten liegen unter 90 %.

Auch die Druckschriften (2) und (7) beschreiben Backverfahren in einem Lösungsmittel. Zur Vermeidung der unerwünschten Disulfonsäurebildung wird die Umsetzung ohne besondere Maßnahmen zur Entfernung des Reaktionswassers bei einer Temperatur knapp unterhalb des Siedepunkts des Lösungsmittels durchgeführt. Um dennoch eine hohe Ausbeute zu erzielen, wird nach (7) ein hoher Überschuß an Schwefelsäure (1,4 Mol pro Mol Amin) verwendet. Auch hierbei betragen die Reaktionszeiten mindestens 20 Stunden (siehe (2) Seite 9, (7) Seite 3). Die dem angegriffenen Patent zugrundeliegende technische Aufgabe kann daher darin gesehen werden, das bekannte "Lösungsmittelbackverfahren" hinsichtlich Reaktionszeit, Ausbeute und Reinheit der Produkte zu verbessern.

- 4.2 Zur Lösung dieser Aufgabe wird vorgeschlagen, das bekannte Verfahren zumindest im letzten Reaktionsabschnitt, zwischen 70 und 100 % Umsatz, unter den im kennzeichnenden Teil des Anspruchs 1 angegebenen Bedingungen, insbesondere in Gegenwart einer bestimmten Wassermenge und unter einem bestimmten Überdruck, durchzuführen. Hierbei werden nach den Beispielen in etwa 3 Stunden hellfarbene Produkte in Ausbeuten von über 95 % mit einem Disulfonsäuregehalt von höchstens 1 % erhalten. Somit ist glaubhaft, daß die bestehende Aufgabe auch tatsächlich gelöst wird.
- 4.3 Keiner der Entgegenhaltungen (2) und (7) lassen sich Anregungen entnehmen, die den Fachmann zu dieser Lösung der Aufgabe hingeführt hätten. Zwar beschreiben diese Druckschriften die Umsetzung in Gegenwart von Wasser. Hierzu wird bei Temperaturen knapp unterhalb des Siedepunkts des

Lösungsmittels gearbeitet (siehe (2), Seite 9 und (7), Seite 3, 1. Absatz), so daß geringe Mengen Wasser im Reaktionsansatz verbleiben (vgl. (7), Zusammenfassung). Dabei wird gemäß (2), Seite 9, 3. vollständiger Absatz nur ein Umsatz von 73 % erreicht. Zur Erhöhung des Umsatzes wird nicht etwa vorgeschlagen, die Wassermenge gegen Ende der Reaktion zu vermindern oder gar unter Überdruck zu arbeiten, sondern die Schwefelsäure im Überschuß einzusetzen (siehe (2), Seite 9, letzter Absatz und (7), Seite 3, letzter Absatz). Der Fachmann entnimmt diesen Lehren, daß die Gegenwart von Wasser im Reaktionsansatz zwar zu reineren Produkten führt, jedoch auf Kosten noch längerer Reaktionszeiten und geringerer Ausbeuten. Der Einsatz zusätzlicher Schwefelsäure beseitigt diese Nachteile zwar, führt aber zu einer unerwünscht hohen Abwasserbelastung. Diese Druckschriften sind somit nach Überzeugung der Kammer nicht geeignet, einen Hinweis darauf zu geben, die im Reaktionsansatz vorhandene Wassermenge gezielt zu beeinflussen.

Dies ist jedoch ein wesentliches Merkmal des Verfahrens gemäß dem angegriffenen Patent, denn nach Auffassung der Kammer ergibt sich aus der Beschreibung, Seite 5, Zeilen 7 bis 18, daß die Angabe im Anspruch 1, wonach in Gegenwart von 0,02 bis 2 Mol Wasser gearbeitet werden muß, dahingehend zu verstehen ist, daß mit fortschreitender Reaktion immer mehr Wasser entfernt wird, so daß die Wassermenge gegen Ende der Umsetzung am geringsten ist, ohne daß die Mindestmenge von 0,02 Mol pro Mol eingesetztem Amin unterschritten wird. Erst nach Ende der Reaktion wird mit dem Lösungsmittel auch dieses restliche Wasser entfernt.

Noch weniger kann diesen Druckschriften, die ausdrücklich lehren, bei einer Temperatur unterhalb des Siedepunkts des Lösungsmittels zu arbeiten, eine Anregung entnommen werden,

die im Reaktionsansatz verbleibende Wassermenge durch Anwendung eines bestimmten Überdrucks zu regulieren.

- 4.4 Was diese Anwendung von Überdruck nach dem Streitpatent angeht, so muß man sich vor Augen halten, daß die in Anspruch 1 enthaltene Bemessungsregel einerseits ausschließt, daß nur ein gegenüber den bekannten Verfahren unter Normaldruck (Rückflußbedingungen) trivialer Überdruck von wenigen Millibar angewendet wird. Andererseits muß der Druck innerhalb der angegebenen Grenzen von 1,1 bis 50 bar so gewählt werden, daß er über dem Partialdruck des Lösungsmittels bei der Reaktionstemperatur, aber unterhalb des Maximaldrucks des Reaktionsansatzes liegt, d. h. es wird bei einem Druck gearbeitet, bei dem gezielt, z. B. über ein Druckhalteventil, dem Reaktionsansatz laufend Wasser- und Lösungsmitteldampf entnommen wird. Zu einer solchen Arbeitsweise konnten auch keine auf allgemeinem Fachwissen basierende Überlegungen verleiten, die Reaktionszeit einfach durch Temperaturerhöhung zu verkürzen, die bei bestimmten Lösungsmitteln Überdruck erfordert. Wie bereits angedeutet, erweist sich die Anwesenheit geringer Mengen Wasser während der Umsetzung nur im Ausnahmefall der Sulfonierung von Anilin als günstig (vgl. (7), die Zusammenfassung und (2), S. 9, Abs. 4), während sonst die unvollständige Entwässerung beim "Lösungsmittelbacken" zur Reaktionsverzögerung, zu Nebenreaktionen und Zersetzung führt (siehe (2), S. 9, Abs. 4). Die Anwendung von Druck, die ohne die besondere Bemessungsregel nach dem Streitpatent zum Zurückhalten wesentlicher Wassermengen und damit reaktionshemmend wirken müßte, kam daher weder als generelle noch als spezifische Lösung der bestehenden Aufgabe für die Sulfanilsäureherstellung in Betracht.
- 4.5 Eine Anregung zu einer Arbeitsweise unter Druck kann auch von (6) nicht ausgehen. Auch dieses Verfahren wird unter

Normaldruck ausgeführt, ohne daß dabei Vorkehrungen getroffen werden, einen Teil des Reaktionswassers zeitweise im Reaktionsgefäß zurückzuhalten. Ohne solche Vorkehrungen ist nach den derzeit nicht widerlegbaren Ausführungen der Beschwerdeführerin die im Reaktionsansatz vorhandene Wassermenge weit geringer als die gemäß dem angegriffenen Patent mindestens anwesenden 0,02 Mol pro Mol eingesetztes Amin. Druckschrift (6) kann ferner auch deshalb keinen Hinweis auf die Anwendung von Überdruck und Zurückhalten einer bestimmten Wassermenge liefern, weil im Gegenteil das Arbeiten unter Vakuum, das zu einer noch rascheren Entfernung des Wassers führen muß, als besonders bevorzugt herausgestellt wird (siehe Anspruch 2).

- 4.6 Weiterhin ist zu berücksichtigen, daß der der Kammer vorliegende Stand der Technik darauf hindeutet, daß die Bemühungen der Fachwelt um die Verbesserung des "Lösungsmittelbackens" vergeblich geblieben sind, so daß gemäß (6) schließlich auf das bezüglich der Produktreinheit schwerer beherrschbare "trockene" Backen zurückgegriffen wurde. Die mit dem Verfahren nach dem angegriffenen Patent nunmehr erzielte deutliche Verbesserung des "Lösungsmittelbackverfahrens" ist daher auch aus diesem Grunde als das Ergebnis einer erfinderischen Tätigkeit anzusehen.
5. Die Ansprüche 2 bis 5 betreffen bevorzugte Ausführungsformen des Verfahrens nach Anspruch 1 und werden daher von dessen Patentfähigkeit getragen.

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 aufgrund der in der mündlichen Verhandlung am 4. April 1989 überreichten fünf Patentansprüche und einer hieran noch anzupassenden Beschreibung aufrechtzuerhalten.

Der Geschäftsstellenbeamte:



Der Vorsitzende:



R.f. 19.4.89
CP