

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

Aktenzeichen / Case Number / N^o du recours : T 167/88 - 3.4.1

Anmeldenummer / Filing No / N^o de la demande : 81 104 150.8

Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N^o de la publication : 0 054 607

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Entfernung von Ammoniumnitrat
Title of invention: aus wässrigen Lösungen
Titre de l'invention :

Klassifikation / Classification / Classement : G 21 F 9/06, C 02 F 1/66

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du 30. August 1989

Anmelder / Applicant / Demandeur :

Patentinhaber / Proprietor of the patent /
Titulaire du brevet : Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

Einsprechender / Opponent / Opposant : Siemens Aktiengesellschaft

Stichwort / Headword / Référence :

EPÜ / EPC / CBE Art. 56

Schlagwort / Keyword / Mot clé : Erfinderische Tätigkeit (nein)

Leitsatz / Headnote / Sommaire



ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.4.1
vom 30. August 1989

Beschwerdeführer:
(Patentinhaber)

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Weberstraße 5
D-7500 Karlsruhe 1

Vertreter:

Herr Rückert

Beschwerdegegner:
(Einsprechender)

Siemens Aktiengesellschaft
Postfach 22 16 34
D-8000 München 22

Vertreter:

Herr Weigel

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Einspruchsabteilung des Europäischen Patentamts vom 14. März 1988, mit der das europäische Patent Nr. 0 054 607 aufgrund des Artikels 102(1) widerrufen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Lederer
Mitglieder: C. Black
L. Mancini

Sachverhalt und Anträge

- I. Die Beschwerdeführerin ist Inhaberin des europäischen Patents 0 054 607 (Anmeldenummer 81 104 150.8).
- II. Auf den von der Firma Alkem GmbH, Hanau, erhobenen Einspruch hin wurde das Streitpatent von der Einspruchsabteilung widerrufen. Der Widerruf wurde mit mangelnder erfinderischer Tätigkeit gegenüber dem sich aus den gemäß Art. 114 (1) EPÜ von der Einspruchsabteilung in das Einspruchsverfahren eingeführten Dokumenten:
- Gmelin, Handbuch der anorganischen Chemie (1936), System Nr. 23, Ammonium, Seiten 89 - 92 (D4)
- Gmelin, Handbuch der anorganischen Chemie (1936), System Nr. 4, Stickstoff, Seiten 900 - 910 (D5)
- ergebenden Stand der Technik begründet.
- III. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin Beschwerde eingelegt.
- IV. Während des laufenden Beschwerdeverfahrens wurde die Firma Alkem GmbH mit der Siemens Aktiengesellschaft verschmolzen.
- V. In einer Mitteilung der Beschwerdekammer wurden des weiteren aus D5 die Seiten 811, 896, 898 und 912 in das Verfahren eingeführt.
- VI. Es wurde mündlich verhandelt. Am Ende der Verhandlung hat die Beschwerdeführerin beantragt, die angefochtene Entscheidung aufzuheben und
1. den Einspruch zurückzuweisen (Hauptantrag)

2. das Patent mit den am 15. Juli 1989 eingegangenen Unterlagen in geändertem Umfang aufrechtzuerhalten (Hilfsantrag).

Die Beschwerdegegnerin hat die Zurückweisung der Beschwerde beantragt.

VII. Der geltende Anspruch 1 gemäß Hauptantrag lautet:

"Verfahren zur Entfernung von Ammoniumnitrat NH_4NO_3 (kurz AN) aus wäßrigen Lösungen, dadurch gekennzeichnet, daß der das AN enthaltenden, wäßrigen Lösung mindestens eine Stickstoff-Sauerstoff-Verbindung in der Form von NO , NO_2 , N_2O_4 oder eines Gemisches aus diesen in gasförmigem Zustand oder im Falle von N_2O_4 auch in flüssigem Zustand bei einer Temperatur oberhalb Raumtemperatur, jedoch unterhalb des Siedepunktes der AN enthaltenden Lösung bei Normaldruck zugeführt wird."

Die Ansprüche 2 und 3 gemäß Hauptantrag sind auf Anspruch 1 rückbezogen.

Der geltende einzige Anspruch gemäß Hilfsantrag lautet:

"Verfahren zur Entfernung von Ammoniumnitrat NH_4NO_3 (kurz AN) aus wäßrigen Lösungen, dadurch gekennzeichnet, daß der das AN enthaltenden, wässrigen Lösung mindestens eine Stickstoff-Sauerstoff-Verbindung in der Form von NO , NO_2 , N_2O_4 oder eines Gemisches aus diesen in gasförmigem Zustand bei einer Temperatur im Bereich zwischen $50\text{ }^\circ\text{C}$ und $100\text{ }^\circ\text{C}$ bei Normaldruck zugeführt wird, wobei die Stickstoff-Sauerstoff-Verbindung in einer Menge der wässrigen, AN enthaltenden Lösung zugeführt wird, die einem Mol-Verhältnis N-O-Verbindung zu AN im Verhältnisbereich 1 Mol N-O-Verbindung zu 1 Mol AN bis 4 Mol N-O-Verbindung zu 1 Mol AN entspricht."

VIII. Die Beschwerdeführerin trug im wesentlichen folgendes vor:

1. Es sei fraglich, ob die Siemens Aktiengesellschaft überhaupt an dem vorliegenden Beschwerdeverfahren beteiligt ist. Sie verwies dazu auf die Entscheidung T 349/86, die in einer ähnlichen Verfahrenssituation ergangen sei und zur Vorlage an die Große Beschwerdekammer geführt habe.

2. Die Einspruchsabteilung habe den Stand der Technik in Kenntnis der Erfindung interpretiert; ferner habe sie die zum Teil widersprüchlichen Angaben der zitierten Dokumente einseitig zu Ungunsten der Beschwerdeführerin und sachlich nicht korrekt bewertet. Sie habe folgende Gleichungen ausgewählt:



und sei dadurch zu dem falschen Schluß gekommen, daß es für den Fachmann nahegelegen habe, Ammoniumnitrat aus wäßrigen Lösungen durch Zuführung von Stickstoff-Sauerstoff-Verbindungen zu entfernen. Die Gleichung I aber laufe vorwiegend nach rechts ab und in D5, Seite 900 stehe unter der Überschrift "Zersetzung der salpetrigen Säure", daß salpetrige Säure unbeständig sei. Die durch Gleichung II gebildete salpetrige Säure unterliege dem Zerfall nach Gleichung I und/oder der Oxidation durch Luftsauerstoff. Ferner werde in Anwesenheit von Salpetersäure das Gleichgewicht nach links verschoben. Schließlich dissoziiere HNO_2 bekanntlich kaum und könne laut D5, Seite 901, "bei Anwesenheit von HNO_3 als undissoziiert betrachtet werden". Daher liege eine äußerst geringe Menge von NO_2 -Ionen als Reaktionspartner für die

NH_4^+ -Ionen in Gleichung III vor. Der Fachmann erhalte deshalb hieraus keine Anregung gemäß Anspruch 1 zu verfahren; vielmehr liege ein überraschender Effekt vor. Die Lösung könne zwar als einfach betrachtet werden; Einfachheit sei aber kein Hindernis für Patentierbarkeit, sondern könne einen Hinweis auf das Vorliegen erfinderischer Tätigkeit geben - vgl. die Entscheidungen T 9/86 (ABl. EPA 1988, 7), T 229/85 (ABl. EPA 1987, 237) und T 106/84 (ABl. EPA 1985, 132).

Darüber hinaus macht die Beschwerdeführerin geltend, daß die Einspruchsabteilung die Gleichungen I und III widersprüchlich interpretiert habe. Obwohl die Wasserlöslichkeit von N_2 in der Größenordnung der von NO liege, bestreite die Einspruchsabteilung einerseits, daß NO aus dem Gleichgewicht gemäß Gleichung I entfernt werde, setze aber andererseits uneingeschränkt die Entfernung von N_2 aus dem Gleichgewicht gemäß Gleichung III voraus.

Zur Stützung ihrer Argumentation verweist die Beschwerdeführerin auf zwei nach dem Prioritätsdatum des angefochtenen Patents veröffentlichte Dokumente. DE-C2-3 140 657 (D6) betreffe ein Verfahren zum Entfernen von Ammoniumionen aus wäßrigen Lösungen durch Zersetzen von Nitritionen, nach welchem Natriumnitrit als Nitritionenquelle verwendet werde. Von einer Verwendung von Stickstoff-Sauerstoff-Verbindungen als Nitritionenquelle sei aber nicht die Rede. Dies könne als Anzeichen dafür gewertet werden, daß für den Fachmann, selbst bei Kenntnis der Gleichung III, diese Verwendung nicht naheliegend gewesen sei. Das Dokument "Fach-Berichte 84/1" der Badenwerk Aktiengesellschaft Karlsruhe (D7) betreffe die Beseitigung von Stickoxiden (NO_x) in Rauchgasen durch Reaktion mit Ammoniak, was als Analogon zu dem Verfahren gemäß Anspruch 1 betrachtet werden könne. Dort seien die verschiedensten Reaktionsbedingungen (Hochtemperatur,

Niedrigtemperatur, mit und ohne Katalysator) diskutiert, von einer Bildung von Ammoniumnitrit werde aber in keinem Fall gesprochen. Hieraus folge, daß die Chemie der Reaktionen der NO_x -Verbindungen nicht einfach ist.

IX. Die Argumentation der Beschwerdegegnerin ist im wesentlichen wie folgt:

Gemäß Gleichung III reagierten Ammoniumionen mit Nitrit-
ionen unter Erzeugen von Stickstoff und Wasser. Dadurch
werde der Fachmann angeregt, Ammoniumionen von wäßrigen
Lösungen durch Reaktion mit Nitritionen zu entfernen.
Im Hinblick auf die bekannten Gleichungen I und II und das
bekannte Dissoziationsverhalten von salpetriger Säure
seien für ihn Stickstoff-Sauerstoff-Verbindungen eine
naheliegende Nitritionenquelle. Die Gleichungen I und II
stellten ein echtes Gleichgewicht dar, wobei die gebildete
salpetrige Säure dissoziiere und die dabei entstehenden
 NO_2 -Ionen nach der Gleichung III reagierten. Durch das
ständige Entfernen von Nitritionen gemäß Gleichung III
werde das Gleichgewicht in Gleichung I nach links, und das
in Gleichung II nach rechts verschoben. Die Dissoziation
von salpetriger Säure sei zwar gering, aber unbeschadet
der Angabe in D5, Seite 901 (" HNO_2 kann ... als
undissoziiert betrachtet werden"), wisse der Fachmann
z. B. aus Holleman/Wiberg, Lehrbuch der Chemie, 1. Teil,
anorganische Chemie (32./33. Auflage), Berlin 1953,
Seite 237 (D1), daß salpetrige Säure zu den mittelstarken
bis schwachen Säuren zählt. Hieraus folge, daß die
Dissoziation nicht geringfügig ist.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.

2. Was die von der Beschwerdeführerin geäußerten Bedenken (s. oben Punkt VIII.1) hinsichtlich der Beteiligung der Siemens Aktiengesellschaft am vorliegenden Einspruchsbeschwerdeverfahren anbelangt, stellt die Kammer in Übereinstimmung mit der Entscheidung G 4/88 der Großen Beschwerdekammer fest, daß mit der Verschmelzung der Firmen Alkem GmbH und Siemens Aktiengesellschaft, letztere an die Stelle der ursprünglichen Einsprechenden getreten und somit am vorliegenden Beschwerdeverfahren beteiligt ist.
3. Als nächstliegenden Stand der Technik erachtet die Kammer die in der Streitpatentschrift in Spalte 1, Zeilen 25 bis 52, aufgeführten Verfahren zur Entfernung von Ammoniumnitrat aus wäßrigen Lösungen. Gegenüber diesem Stand der Technik ist der Gegenstand des Anspruchs 1 zwar neu, was auch von der Beschwerdegegnerin nicht bestritten wird, er beruht jedoch nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit.
4. Ausgehend von diesem Stand der Technik liegt dem Streitpatent die Aufgabe zugrunde, ein einfacheres Verfahren zur Entfernung von Ammoniumnitrat aus wäßrigen Lösungen zu erzielen.

Der Fachmann, der sich mit dieser Aufgabe zu befassen hat, wird zweifellos zunächst die chemischen Eigenschaften von Ammoniumnitrat untersuchen. Dabei wird er im Bedarfsfall zumindest Standardwerke, wie die oben unter Punkt II und IX zitierten, heranziehen. Aus D4, Seite 91, weiß er daher, daß sich Lösungen, die Ammoniumsalze (wie z. B. Ammoniumnitrat) und Nitrite in nicht äquivalenten Mengen enthalten, nach der unter Punkt VIII erwähnten Gleichung III zersetzen.

Die Kammer stimmt der Beschwerdegegnerin darin zu, daß der Fachmann hierdurch angeregt wird, das Entfernen von

Ammoniumionen aus wäßrigen Lösungen durch Reaktion mit Nitriten zu untersuchen und daher nach einer geeigneten Quelle für Nitriten zu suchen.

5. Den Gleichungen I und II (siehe Punkt VIII oben) ist zu entnehmen, daß durch Zuführung von Stickstoff-Sauerstoff-Verbindungen in wäßrigen Lösungen salpetrige Säure erzeugt wird. Es ist ferner dem Fachmann aus D1, Seite 237, bekannt, daß salpetrige Säure zu den mittelstarken bis schwachen Säuren zählt, so daß durch ihre Dissoziation Nitriten erzeugt werden. Für ihn ist es daher nahe- liegend mindestens zu untersuchen, ob durch die Einführung von Stickstoff-Sauerstoff-Verbindungen in wäßrigen Lösungen Nitriten in ausreichender Menge für die Reaktion gemäß Gleichung III erzeugt werden.
6. Wie die Beschwerdegegnerin nach Überzeugung der Kammer zurecht geltend macht, stellen die Gleichungen I und II ein echtes Gleichgewicht dar, so daß immer genügend salpetrige Säure vorliegt, aus der durch Dissoziation Nitriten erzeugt werden.
7. Zwar enthält D5, Seite 901, die Angabe, daß salpetrige Säure bei Anwesenheit von HNO_3 als undissoziiert betrachtet werden kann. Nach Meinung der Kammer wird der Fachmann hierdurch aber nicht abgehalten, die oben erwähnten Untersuchungen durchzuführen. Er wird der Offenbarung in D1, Seite 237, schon deshalb größere Bedeutung beimessen, weil die Feststellung in D1 im Gegensatz zu der in D5 bestimmt formuliert ist.
8. Zu der Argumentation der Beschwerdeführerin, daß salpetrige Säure bekanntlich unbeständig und deshalb nicht als geeignete Nitritenquelle zu betrachten ist, ist zu bemerken, daß gemäß D5, Seite 900 oben, die Zersetzungs- reaktion als reversibel zu gelten hat, wobei das

Verhältnis HNO_3 : HNO_2 im Mittel 9:1 beträgt, also ein erheblicher Anteil an HNO_2 vorhanden ist. Ferner ist aus D5, Seite 898, zu entnehmen, daß eine wäßrige Lösung von HNO_2 zwar unbeständig ist, sich jedoch beim Kochen nicht augenblicklich zersetzt.

9. Die Kammer kann der Beschwerdeführerin nicht darin zustimmen, daß die Einspruchsabteilung die Gleichungen I und III widersprüchlich interpretiert habe, weil die Gleichung I eine reversible, die Gleichung III eine irreversible Reaktion darstellt.
10. Die durch Gleichung II gebildete salpetrige Säure unterliegt zwar der Oxidation durch Luftsauerstoff; diese Reaktion findet aber überwiegend an der Oberfläche der wäßrigen Lösung statt, so daß - auch wenn diese mögliche Reaktion in Betracht gezogen wird - zu erwarten ist, daß immer genügend salpetrige Säure vorhanden ist.
11. Zu den Dokumenten D6 und D7 ist folgendes zu bemerken: In D6 ist zwar lediglich Natriumnitrit als Nitritionquelle erwähnt. Dort ist aber die Verwendung von Natriumnitrit vorzuziehen, weil es vorteilhafterweise im Zementkörper zur Verringerung einer möglichen Radiolysegasbildung beiträgt (Spalte 2, Zeilen 50 bis 54); ferner läßt sich das anfallende Natriumnitrat gut zementieren (Spalte 2, Zeilen 46, 47). Für den Chemiker ist die Wahl von Nitritionquellen ziemlich begrenzt (Alkalimetallnitrite, Erdalkalimetallnitrite, Silbernitrit und salpetrige Säure) und von ihm ist zu erwarten, daß er, vor die dem Streitpatent zugrundeliegende Aufgabe gestellt (s. oben Punkt 4), sein Augenmerk eher auf die salpetrige Säure richten wird, um die Einführung eines weiteren, vielleicht störenden, Metallkations zu vermeiden.

Die in D7 beschriebenen Verfahren zur Verminderung von Stickoxidemissionen sind nicht mit dem Verfahren im vorliegenden Patent zu vergleichen. Von einer Reaktion in einer wäßrigen Lösung ist nämlich nicht die Rede. Bei einem Naßverfahren ist Ozon als Reaktionsmittel benannt, in welchem Fall (oxidierende Atmosphäre) eine Bildung von Ammoniumnitrit kaum zu erwarten wäre.

12. Der Argumentation der Beschwerdeführerin, daß bei dem beanspruchten Verfahren ein überraschender Effekt vorliege, kann seitens der Kammer nicht gefolgt werden. Wie gesagt, entsprechen die Gleichungen I und II reversiblen Reaktionen, die Gleichung III einer irreversiblen Reaktion. Es gehört zum Fachwissen des Chemikers, daß eine reversible Reaktion auch in der unbegünstigten Richtung verschoben wird, solange ein Reaktionsprodukt entfernt wird. Nach alledem genügt der Anspruch 1 gemäß Hauptantrag nicht den Erfordernissen der Artikel 52 (1) und 56 EPÜ.

13. Anspruch 1 gemäß Hilfsantrag ist eine Kombination der Merkmale der Ansprüche 1, 2 und 3 der Patentschrift. Die aus den Ansprüchen 2 und 3 hinzugefügten Merkmale definieren jedoch lediglich besonders günstige Bereiche für die Reaktionsbedingungen, die durch einfache Versuche ermittelt werden können. Sie beruhen deshalb gleichfalls nicht auf erfinderischer Tätigkeit.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

Die Beschwerde wird zurückgewiesen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

M. Beer

K. Lederer