

A		B	X	C	
---	--	---	---	---	--

Aktenzeichen: T 590/90 - 3.3.1

Anmeldenummer: 81 105 361.0

Veröffentlichungs-Nr.: 0 049 740

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von
Dialkylperoxydicarbonaten

Klassifikation: C07C2 179/14

E N T S C H E I D U N G
vom 24. März 1993

Patentinhaber: Peroxid-Chemie GmbH

Einsprechender: 01) Luperox GmbH
02) Akzo N.V.

Stichwort: Dialkylperoxydicarbonate/PEROXID

EPÜ Artikel 56

Schlagwort: "Erfinderische Tätigkeit (ja)" "Nicht naheliegende Übertragung
einer an sich bekannten Maßnahme entgegen einer durch weitere
Dokumente gestützten Warnung (8.2, 8.4, 8.5)" "Gesamtverfahren
erfinderisch bei Abwandlung eines bekannten Verfahrens durch zwei
Maßnahmen, von denen jedenfalls eine nicht naheliegend ist (8.5)"



**Europäisches
Patentamt**

**European
Patent Office**

**Office européen
des brevets**

Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

Aktenzeichen: T 590/90 - 3.3.1

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 24. März 1993

Beschwerdeführer:
(Patentinhaber)

Peroxid-Chemie GmbH
Dr.-Gustav-Adolf-Straße 3
W - 8023 Höllriegelskreuth (DE)

Vertreter:

Weickmann, Heinrich, Dipl.-Ing.
Patentanwälte
H. Weickmann, Dr. K. Fincke
F.A. Weickmann, B. Huber
Dr. H. Liska, Dr. J. Prechtel
Koopernikusstraße 9
Postfach 86 08 20
W - 8000 München 86 (DE)

Beschwerdegegner:
(Einsprechender 01)

Luperox GmbH
Denzinger Straße 7
W - 8870 Günzburg (DE)

Vertreter:

Abitz, Walter, Dr.-Ing.
Abitz, Morf, Gritschneider,
Freiherr von Wittgenstein
Postfach 86 01 09
W - 8000 München 86 (DE)

Beschwerdegegner:
(Einsprechender 02)

Akzo N.V.
Velperweg 76
NL - 6824 BM Arnhem (NL)

Vertreter:

Dipl.-Phys.Dr. Manitz
Dipl.-Ing. Finsterwald
Dipl.-Ing. Grämkow
Dipl.-Chem. Dr. Heyn
Dipl.-Phys. Rotermund
B.Sc. Morgan
Robert-Koch-Straße 1
W - 8000 München 22 (DE)

Angefochtene Entscheidung:

Entscheidung der Einspruchsabteilung des Europäischen Patentamts vom 18. Mai 1990, mit der das europäische Patent Nr. 0 049 740 aufgrund des Artikels 102 (1) EPÜ widerrufen worden ist.

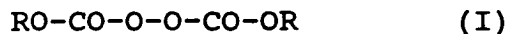
Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K.J.A. Jahn
Mitglieder: P. Krasa
J.C. Saisset

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die europäische Patentanmeldung 81 105 361.0 wurde das europäische Patent 0 049 740 mit zwölf Ansprüchen erteilt. Anspruch 1 lautete:

"Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von Dialkylperoxydicarbonaten der allgemeinen Formel I



in der R für gleichartige oder verschiedene, geradkettige, cyclische oder verzweigte Alkylgruppen mit 6 bis 18 Kohlenstoffatomen stehen, durch kontinuierliches Umsetzen eines Chlorameisensäureesters der allgemeinen Formel II



worin R die oben angegebenen Bedeutungen besitzt, in wäßrigem Medium mit Wasserstoffperoxid und einem Alkalimetallhydroxid bei einer Temperatur im Bereich von - 10 °C bis + 50 °C in mindestens zwei hintereinander geschalteten Reaktionszonen und kontinuierliches Isolieren des Dialkylperoxydicarbonats aus der lösungsmittelfreien Reaktionsmischung mit Hilfe einer Zentrifuge, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung in Gegenwart eines Netzmittels durchführt und das Dialkylperoxydicarbonat in geschmolzener Form aus der auf die Schmelztemperatur des Dialkylperoxydicarbonats erhitzten alkalischen Reaktionsmischung isoliert."

- II. In zwei frist- und formgerecht gegen die Patenterteilung eingelegten Einsprüchen wurde der Widerruf des Patents beantragt, da dessen Gegenstand weder neu, noch

erfinderisch sei. Die Einsprüche waren u. a. auf folgende Druckschriften gestützt:

- (1) US-A-3 950 375
- (2) GB-A-1 239 088
- (5) DE-B-2 334 269.

Während des Einspruchsverfahrens wurden u. a. noch folgenden Dokumente angezogen:

- (6) Firmenschrift d. Fa. PEROXID-CHEMIE GmbH "Organische Peroxide, Allgemeine Information, Halbwertszeiten"
- (9) Research Disclosure, May 1980; 19302
- (12) US-A-3 821 273
- (13) US-A-3 657 312
- (14) US-A-3 657 311.

In der mündlichen Verhandlung, die am 24. März 1993 stattfand, hat die Kammer gutachtlich auf

- (18) Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology (3rd Ed.), Vol. 17 [1982], Seiten 66 - 71

hingewiesen.

III. Die Einspruchsabteilung hat das Streitpatent durch die Entscheidung vom 18. Mai 1990 widerrufen. Dort wird ausgeführt, daß der Gegenstand des Patents neu sei, da keine Entgegenhaltung ein Verfahren beschreibe, das durch die beiden Merkmale [a] Umsetzung in Gegenwart eines Netzmittels und [b] Isolierung der Dialkylperoxydicarbonate (= DAPC) in geschmolzener Form charakterisiert sei. Er beruhe aber nicht auf erfinderischer Tätigkeit. Der nächste Stand der Technik sei das in Dokument (1) beschriebene Verfahren zur Herstellung von DAPC. Dabei werde Chlorameisensäureester in wäßrigem Medium mit

Wasserstoffperoxid und einem Alkalimetallhydroxid bei - 10 bis + 50 °C in mindestens zwei hintereinander geschalteten Reaktionszonen umgesetzt und das DAPC mit Hilfe einer Zentrifuge kontinuierlich aus dem lösungsmittelfreien Reaktionsgemisch isoliert. Da nach diesem Verfahren auch flüssige Produkte gewonnen werden können (auch Dimyristylperoxydicarbonat könne in flüssiger Phase anfallen, da es bei 46 °C schmelze und (1) Reaktions-temperaturen von bis zu 50 °C vorschlage) unterscheide sich jenes des Streitpatents davon lediglich durch die Verwendung eines Netzmittels. Dies sei aber eine allgemein übliche und in zahlreichen Dokumenten beschriebene Maßnahme.

Die Patentinhaberin habe auch nicht gezeigt, daß mit dem beanspruchten Verfahren ein überraschender Effekt verbunden sei. Von ihr zu diesem Zweck vorgelegte Vergleichsversuche seien nicht aussagekräftig, da sie weder kontinuierlich durchgeführt, noch die verwendeten Netzmittel spezifiziert worden seien, bzw. nicht von der im Stand der Technik vorgeschlagenen Aufarbeitung durch flüssig-fest Zentrifugieren Gebrauch gemacht werde. Im übrigen habe gegen das Arbeiten mit geschmolzenem DAPC auch kein Vorurteil bestanden.

- IV. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin (Patentinhaberin) am 20. Juli 1990 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde eingelegt und diese, unter Vorlage eines neuen Anspruchs 1 und neuer Versuche, am 12. September 1990 begründet. Der neue Anspruch 1 unterscheidet sich vom Anspruch 1 in der erteilten Fassung durch die zusätzliche Maßnahme, daß die Umsetzung nunmehr "unterhalb des Schmelzpunktes des Produkts" durchgeführt werden soll.

Die Beschwerdeführerin hat ausgeführt, daß durch diese Änderung der Unterschied gegenüber dem Verfahren des Dokuments (1) klargestellt werde. Während man nach dem Verfahren des Streitpatents erst nach erfolgter Umsetzung ein Erhitzen über den Schmelzpunkt vornehme, sei die Temperaturführung in dieser Entgegenhaltung genau umgekehrt.

Nach Ansicht der Beschwerdeführerin zeigen die von ihr vorgelegten Vergleichsversuche eine deutliche Ausbeute- und Qualitätsminderung der Verfahrensprodukte, wenn die beiden oben genannten Maßnahmen [a] und [b] nicht strikt eingehalten werden. Diese Maßnahmen seien durch den Stand der Technik nicht nahegelegt worden, da der Zusatz eines Netzmittels die Emulsionsbildung fördere, was für das vorliegende Verfahren eher nachteilig sei, und das aus Dokument (2) bekannte Reinigungsverfahren für feste Diacylperoxide durch Aufschmelzen und Zentrifugieren vom Fachmann nicht auf die thermisch wesentlich instabileren DAPC angewandt worden wäre.

- V. Die Beschwerdegegnerinnen haben schriftlich und mündlich entgegnet, daß das in den Anspruch 1 neu aufgenommene Merkmal das Patenbegehren sachlich nicht ändere. Die Temperaturführung sei auch jetzt mit jener der Druckschrift (1) identisch, da beide Verfahren in zwei Stufen durchgeführt würden, wobei die Umsetzungstemperatur (unter Bezugnahme auf die jeweiligen Beispiele 1) in der zweiten Stufe niedriger sei als in der ersten Stufe.

Nach Ansicht der Beschwerdegegnerinnen sind die Vergleichsversuche der Beschwerdeführerin als Beweismittel für erfinderische Tätigkeit ungeeignet, da sie lediglich die dem Fachmann bekannten Vorteile der Maßnahmen [a] und [b] bestätigten.

Die gegenüber Dokument (1) patentgemäß zu lösende Aufgabe könne lediglich darin gesehen werden, das aus (1) bekannte Verfahren so abzuändern, daß auch DAPC, die bei Raumtemperatur fest sind, in hoher Ausbeute und Reinheit hergestellt werden können. Die zur Lösung dieser Aufgabe im Streitpatent vorgeschlagene Verwendung eines Netzmittels gehöre nicht nur zum allgemeinen Fachwissen des Fachmanns, sondern sei in den Dokumenten (13) und (14) auch speziell für die Herstellung von DAPC offenbart.

Das weitere Lösungsmerkmal des Aufschmelzens der erhaltenen festen DAPC und ihrer Abtrennung durch flüssigflüssig Zentrifugieren sei in Dokument (2) für Diacylperoxide beschrieben worden und habe dem Fachmann eine erhöhte Reinheit der Produkte versprochen. Ein Hindernis, diese Maßnahme auf DAPC zu übertragen habe für diesen nicht bestanden, da er aus Dokument (12), aber auch aus Dokument (6), auf eine ausreichende Stabilität der Verbindungen bei den fraglichen Temperaturen schließen konnte. Für den Fachmann sei ein Stabilitätsunterschied zwischen Diacylperoxiden und DAPC insbesondere bei der jeweiligen Schmelztemperatur am Anmeldetag des Streitpatents nicht zu erkennen gewesen.

VI. Die Beschwerdeführerin hat beantragt, die angefochtene Entscheidung aufzuheben und das Patent aufgrund des Anspruchs 1, eingegangen am 12. September 1990, sowie der erteilten Ansprüche 2 bis 12 aufrechtzuerhalten.

Die Beschwerdegegnerinnen haben beantragt, die Beschwerde zurückzuweisen.

Am Ende der mündlichen Verhandlung verkündete der Vorsitzende die Entscheidung der Kammer, der Beschwerde stattzugeben.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.

2. Änderungen

In Spalte 3, Zeilen 37 bis 39 des Streitpatents (entsprechend Seite 4, Zeile 36 bis Seite 5, Zeile 1 der ursprünglichen Unterlagen) sowie den beiden Beispielen wird offenbart, daß die DAPC als wäßrige Suspension anfallen, d. h., daß die Reaktion unterhalb des Schmelzpunkts des (festen) DAPC durchgeführt wird. Die Änderung des Anspruchs 1 ist daher nach Artikel 123 zulässig.

3. Neuheit

Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist in keiner Entgegenhaltung vorbeschrieben und daher neu. Dies erfordert, da unbestritten, keine nähere Begründung.

4. Erfinderische Tätigkeit

Das Streitpatent betrifft ein Verfahren zur Herstellung von DAPC der Formel RO-CO-O-O-CO-OR, in der R für gleichartige oder verschiedene, geradkettige, cyclische oder verzweigte Alkylgruppen mit 6 bis 18 Kohlenstoffatomen steht.

Verfahren zur Herstellung von DAPC sind bekannt aus Dokument (1), in dem ein kontinuierliches Verfahren für DAPC mit R = Alkyl mit 2 bis 16 C-Atomen, konkret für Di-sec-butyl-, Di-n-propyl- und Di-isopropylperoxydicarbonat, beschrieben wird, und aus den

Dokumenten (12), (13) und (14), die diskontinuierliche Herstellungsverfahren von DAPC offenbaren.

5. Die Kammer geht für die Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit von Dokument (1) aus. Diese Entgeghaltung warnt vor den Gefahren einer explosiven Zersetzung der DAPC durch Hitzeeinwirkung oder Schlag und weist darauf hin, daß es bei der Herstellung reiner Produkte in größeren Ansätzen zu schwerwiegenden Explosionen gekommen ist (Spalte 1, Zeilen 23 bis 28).

Bei dem in Druckschrift (1) beschriebenen Verfahren wird Alkylchlorformiat kontinuierlich mit wäßrigem Wasserstoffperoxid und wäßrigem Alkalimetallhydroxid, in Abwesenheit eines organischen Lösungsmittels bei Temperaturen zwischen - 10 °C und 50 °C umgesetzt. Die Verwendung eines Netzmittels wird nicht erwähnt. Fest anfallende Reaktionsprodukte werden mittels einer festflüssig Zentrifuge isoliert, flüssige Reaktionsprodukte mit einer flüssig-flüssig Zentrifuge (Spalte 2, Zeilen 20 bis 33, Zeilen 53 bis 61, in Verbindung mit Zeile 15). Die Reaktion wird in zwei hintereinander geschalteten Reaktoren durchgeführt, die beide mit effizienten Rühr- und Kühlvorrichtungen zu versehen sind, wobei die Reaktionstemperatur im zweiten Reaktor vorzugsweise auf 9 - 11 °C abgesenkt wird, da es während des Zentrifugierens zu einer leichten Erwärmung kommen kann (Spalte 2, Zeilen 40 bis 52). In die Zentrifuge wird kontinuierlich das gekühlte Reaktionsgemisch eingebracht (Spalte 2, Zeilen 53 bis 55). Diese Beschreibung der Verfahrensschritte ist in Übereinstimmung mit der eingangs genannten Warnung und gibt dem Fachmann die Lehre, das Verfahren, einschließlich der Aufarbeitung des Reaktionsgemisches, unter Kühlung auszuführen und jedes Erwärmen zu vermeiden.

Abgesehen von den in den Beispielen hergestellten Verbindungen Di-sec-butyl-, Di-n-propyl- und Di-isopropylperoxydicarbonat, werden Di-cyclohexyl-, Di-tetradecyl- und Di-cetylperoxydicarbonat als nach diesem Verfahren herstellbare Verbindungen genannt (Spalte 2, Zeilen 56 bis 57, in Verbindung mit der Formel in Spalte 1, Zeilen 55 und 56).

6. Nach dem Streitpatent soll die Aufgabe darin bestanden haben ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von insbesondere trocken anfallenden, festen DAPC in hoher Ausbeute (bezogen auf den eingesetzten Chlorameisensäureester) und Reinheit bei geringer Umweltbelastung anzugeben (Spalte 2, Zeilen 7 bis 16). Angesichts der Tatsache, daß - wie ausgeführt -Dokument (1) bereits ein kontinuierliches, lösungsmittelfreies, d. h. umweltfreundliches Verfahren zur Herstellung auch fester DAPC offenbart, erscheint eine Neudefinition der bestehenden Aufgabe angezeigt.
7. Im ersten der von der Beschwerdeführerin am 12. September 1990 eingereichten Vergleichsversuche wurde gezeigt, daß das Abstellen der Netzmittelzugabe bei einer gemäß Beispiel 1 des Streitpatents betriebenen Anlage einen Abfall des organischen Peroxidgehalts des Dimyristylperoxydicarbonats (MYPC) von 97,2 % auf 62,4 % und einen Anstieg des Chlorgehalts von 0,011 % auf 4,55 % bewirkt (Versuchsbericht, Anlage zur Beschwerdebegründung, Seiten 1 und 2).

Der zweite Vergleichsversuch (Versuchsbericht, Seite 3) zeigt, daß die direkte (fest-flüssig) Abtrennung des Reaktionsprodukts mittels einer Siebzentrifuge wegen der Bildung einer undurchlässigen Schicht schwierig ist, zu einem Ausbeuteabfall von 96,9 % auf 91,0 % MYPC und zu einem Anstieg des Chlorgehalts von 0,019 % auf 0,66 % führt.

Wenngleich damit, wegen des Fehlens eines Beispiels in Dokument (1) zur Herstellung von MYPC, keine exakte Nacharbeitung des Standes der Technik vorliegt, so beurteilt die Kammer diese Versuche gleichwohl als relevant, weil sie einerseits die bekannte kontinuierliche Verfahrensweise ohne Lösungs- und Netzmittel nach Dokument (1) wiedergeben und andererseits so angelegt sind, daß bei sonst gleichen Bedingungen jeweils nur ein Verfahrensparameter geändert wird. Ausweislich des vorstehend angegebenen Resultats bestand demnach die technische Aufgabe nach dem Streitpatent darin, ein weiteres kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von DAPC mit verbesserter Ausbeute und Reinheit vorzuschlagen. Aufgrund der zitierten Ergebnisse ist es glaubhaft, daß die bestehende Aufgabe gelöst wurde. Dies wurde von den Beschwerdegegnerinnen nicht bestritten, die zuletzt auch nicht mehr eingewandt haben, die Versuche seien unsachgemäß ausgeführt worden.

Das Netzmittel wird in diesen neuen Versuchen der Beschwerdeführerin nicht genannt, ein Umstand, den die Vorinstanz betreffend der ihr vorliegenden Versuche gerügt hatte. Die Kammer kann sich diesem Einwand nicht anschließen. In Spalte 3, Zeilen 7 bis 13 des Streitpatents wird festgestellt, daß man als Netzmittel "beliebige, den Reaktionsablauf nicht störende oberflächenaktive Mittel" verwenden kann. Danach kommt es also für eine erfolgreiche Lösung der bestehenden Aufgabe nicht auf die Art des Netzmittels an. Es gibt auch keine Anhaltspunkte dafür, daß die chemische Natur des Netzmittels erfindungswesentlich ist.

8. Es bleibt zu prüfen, ob der Vorschlag, die bestehende technische Aufgabe mit den im Anspruch 1 angegebenen Mitteln zu lösen, auf erfinderischer Tätigkeit beruht.

Die Beschwerdegegnerinnen haben vorgetragen, beide Maßnahmen, durch die sich die technische Lehre des Streitpatents von jener der Entgegenhaltung (1) unterscheidet, nämlich

- die Verwendung eines Netzmittels und
- das Aufschmelzen der fest anfallenden Produkte durch Erhitzen auf den Schmelzpunkt zwecks Gewinnung durch flüssig-flüssig Zentrifugieren,

seien als solche bereits Stand der Technik und ihre Übertragung auf das in Dokument (1) beschriebene Verfahren für den Fachmann angesichts der zu erwartenden Vorteile naheliegend.

- 8.1 Die bloße Verwendung eines Netzmittels, dessen Funktion in Dokument (5) im Zusammenhang mit der Herstellung von 4,4'-Di-tert.-butylbenzoylperoxid erläutert wird (Spalte 2, Zeilen 26 bis 33), zur Herstellung von DAPC mit längeren Alkylresten erscheint auf den ersten Blick naheliegend, denn die in den Beispielen der Entgegenhaltung (1) hergestellten DAPC weisen nur niedrige Alkylreste (mit nicht mehr als 4 C-Atomen) auf, so daß dort vernünftige Ausbeuten auch ohne Zusatz von Netzmitteln zu erreichen waren. Im übrigen wird der Einsatz von Netzmitteln bei der diskontinuierlichen Herstellung von höheren DAPC mit z. B. 9 oder 10 C-Atomen im Alkylrest in Dokument (13) (vgl. Beispiele 1 bis 4) und in Dokument (14) (vgl. Beispiele 1 und 2) beschrieben.

Die Beschwerdeführerin hat hingegen vorgetragen, vom Netzmittelzusatz wäre eine ungünstige Beeinflussung der Phasentrennung bei der Aufarbeitung wegen der

Stabilisierung der Emulsion zu befürchten gewesen. Im vorliegenden Fall kann - wie noch auszuführen ist (vgl. unten Punkt 8.5) - dahinstehen, ob der Fachmann bei der Abwägung des Nachteils erschwerter Emulsionsbrechung gegen den Vorteil höherer Ausbeute und Reinheit (vgl. (5) Anspruch 1 in Verbindung mit Spalte 2, Absatz 2) zum Netzmittel gegriffen hätte.

8.2 Die Kammer ist aber der Überzeugung, daß das Merkmal einer Isolierung der unterhalb ihrer Schmelztemperatur hergestellten DAPC in geschmolzener Form aus der auf die Schmelztemperatur des entsprechenden Peroxydicarbonats erhitzten alkalischen Reaktionsmischung wegen der deutlichen, in Dokument (1) ausgesprochenen Warnung (vgl. oben, Punkt 5) für den Fachmann nicht nahelag. Diese Warnung kann nicht als ein einzelner Hinweis im Stand der Technik angesehen werden, dem ein Fachmann nicht allzuviel Gewicht beigemessen hätte. Sie ist vielmehr in Übereinstimmung mit Feststellungen in den Dokumenten (13) und (14), daß Dialkylperoxydicarbonate und Dicyclohexylperoxydicarbonate unter Kühlung manipuliert, transportiert und gelagert werden müssen. Diese Verbindungen zersetzen sich bei Raumtemperatur schnell, oft explosiv, da die Zersetzung exotherm ist (Dokument (13), Spalte 1, Zeilen 42 bis 48 und Dokument (14), Spalte 1, Zeilen 39 bis 45).

8.3 In Druckschrift (2) wird ein Verfahren zur Reinigung von bei Raumtemperatur festen Diacylperoxiden beschrieben, bei dem eine wäßrige Suspension dieser Verbindung mittels Dampf gerade über den Schmelzpunkt des Diacylperoxids erhitzt und dieses aus der sich bildenden Emulsion durch Zentrifugieren abgetrennt wird (Seite 1, Zeile 82 bis Seite 2, Zeile 17). Die Emulsion wird in die vorgewärmte Tellerzentrifuge eingebracht, und das isolierte Peroxid sehr schnell abgekühlt (Seite 2, Zeilen 56 bis 62). Die

Ausgangssuspension kann auch Emulgiermittel enthalten (Seite 2, Zeilen 96 bis 103).

8.4 Da die nach Dokument (2) zu reinigenden Gemische, abgesehen von der Art des Peroxids, den nach Druckschrift (1) erhältlichen Suspensionen weitestgehend entsprechen, stellt sich die Frage, ob der Fachmann dieses Verfahren angesichts der zu lösenden technischen Aufgabe auf DAPC angewandt hätte.

8.4.1 Die Druckschriften (12), (13) und (14), in denen die Herstellung von bei Raumtemperatur festen DAPC beschrieben wird, offenbaren nur die Filtration der Produkte als Isolierungsmöglichkeit wobei die Aufarbeitung in der Kälte erfolgt, meist bei etwa 10 °C (siehe (12), Beispiele 1 bis 7, insbesondere Spalte 5, Zeilen 49 bis 51; (13), Beispiele 1 bis 3, insbesondere Spalte 3, Zeilen 21 bis 23; (14), Beispiele 1 und 2, insbesondere Spalte 3, Zeilen 3 bis 4).

Somit bestätigen diese Druckschriften, wie oben bereits erläutert, die in Dokument (1) ausgesprochene Warnung vor jeglichem Erhitzen der anfallenden thermosensiblen DAPC.

8.4.2 Daß die Fachwelt flüssige DAPC für gefährlich gehalten hat, wird auch durch die von der Kammer während der mündlichen Verhandlung gutachtlich in das Verfahren eingeführte Literaturstelle (18) bestätigt. Dort findet sich z. B. auf Seite 71 eine Tabelle in der fünfzehn DAPC mit physikalischen Daten aufgelistet sind. In einer Fußnote dieser Tabelle wird angemerkt: "All of the listed peroxides are unstable in the liquid state above 20 °C; some decompose violently."

Die Beschwerdeführerinnen haben diesen Sachverhalt nicht in Zweifel gezogen, wohl aber, ob er bereits zum

Prioritätsdatum (9. Oktober 1980) des Streitpatents bekannt gewesen und so den Fachmann von der jetzt vorgeschlagenen Lösung abgehalten hätte.

Die Kammer hat ihre Ansicht, der Fachmann hätte aus der Sicht der bestehenden Aufgabe ein Aufschmelzen fest anfallender DAPC wegen deren thermischen Instabilität nicht in Betracht gezogen, auf die Dokumente (1), (12), (13) und (14) gegründet und betrachtet (18) nur als ein zusätzliches Indiz für die Richtigkeit dieser Auffassung. Sie hält dies für zulässig, da nach ihrer Erfahrung Enzyklopädien wie (18) in der Regel einen Stand der Technik referieren, der nicht erst kurz vor ihrem Erscheinungsjahr entstanden ist. Dies trifft auch im vorliegenden Fall zu, in dem jene Publikationen, auf denen die genannte Tabelle in Dokument (18) beruht, ausweislich ihrer Veröffentlichungsdaten, vor dem Prioritätsdatum des Streitpatents erschienen sind.

- 8.4.3 Schließlich sieht die Kammer eine weitere Stützung ihrer Beurteilung in den Ausführungen der einen Beschwerdegegnerin (Einsprechende 01) in deren Schriftsatz vom 28. März 1991. Dort nimmt sie auf Seite 3 zum Vergleichsversuch 2 der Beschwerdeführerin (vgl. oben, Punkt 7) Stellung. Sie schlägt eine weitere Alternative zu dem aus Dokument (1) bekannten Verfahren vor, bei dem zur Aufarbeitung des Reaktionsgemisches angesäuert, das Produkt aufgeschmolzen, durch Abkühlen mit kaltem Wasser verfestigt und anschließend durch fest-flüssig Zentrifugieren gewonnen wird. Aus der Tabelle auf Seite 4 dieses Schriftsatzes geht hervor, daß das so gewonnene Produkt auf der Zentrifuge gewaschen wird (3. Alternative, Punkt 4). Sie führt dazu aus: "Diese fest/flüssig-Abtrennung bedeutet auch eine Verbesserung der Sicherheit gegenüber dem flüssig/flüssig-Verfahren, da das

Percarbonat nicht in reiner, flüssiger Form abgetrennt wird."

Dies zeigt zum einen, daß dem Fachmann, der bei der festflüssig Trennung des Verfahrens nach Dokument (1) auftretende Schwierigkeiten überwinden wollte, auch andere Möglichkeiten als die im Streitpatent vorgeschlagenen zur Verfügung standen und bestätigt zum anderen, daß DAPC in reiner flüssiger Form ein erhöhtes Sicherheitsrisiko darstellt.

- 8.4.4 Die Beschwerdegegnerinnen haben eingewandt, aus Dokument (6) ergebe sich, daß, entgegen den Ausführungen der Beschwerdeführerin, DAPC thermisch nicht instabiler seien als z. B. Dilauroylperoxid. Man dürfe nämlich nicht die dort angegebenen Halbwertszeiten, wie von der Beschwerdeführerin vorgeschlagen, bei einer bestimmten Temperatur, z. B. bei 50 °C vergleichen; technisch sinnvoll sei lediglich ein Vergleich bei den jeweiligen Schmelztemperaturen. Aus Dokument (6), das von allen Beteiligten als Stand der Technik anerkannt wurde, obwohl eine eindeutige Datierung nicht möglich war, habe der Fachmann für Dilauroylperoxid - einem Diacylperoxid - bei 50 °C, d. h. etwas unterhalb des Schmelzpunktes dieser Substanz, eine Halbwertszeit von 42 Stunden entnehmen können, während für DAPC bei 30 °C eine Halbwertszeit von 55 Stunden angegeben sei (vgl. (6), Seiten 12 und 13). Von einer größeren thermischen Instabilität der DAPC im Vergleich zu den Diacylperoxiden bei der jeweiligen Schmelztemperatur könne daher keine Rede sein.

In diesem Dokument (6) werden die Halbwertszeiten der organischen Peroxide in extremer Verdünnung, nämlich in 0,1 molarer benzolischer Lösung untersucht. Diese Werte sind daher nach Überzeugung der Kammer nicht geeignet, Rückschlüsse auf die Stabilität der jeweiligen Peroxid-

verbindungen in Substanz zu erlauben, da dort, wegen des fehlenden Verdünnungsmittels, eine dissipative Wärmeabfuhr nicht möglich ist, und daher Zersetzungsreaktionen unkontrollierbar werden können. Aus dem gleichen Grund kann aber Dokument (6) die von der Beschwerdeführerin behauptete größere thermische Labilität der DAPC im Vergleich zu den Diacylperoxiden nicht stützen.

- 8.4.5 In der mündliche Verhandlung vor der Kammer haben die Beschwerdegegnerinnen nachdrücklich auf Dokument (12) verwiesen, dem zu entnehmen sei, daß die "höheren" DAPC eine für die Isolierung durch flüssig-flüssig Zentrifugieren der Schmelzen ausreichende Stabilität besäßen. Insbesondere beriefen sie sich auf die dort in Tabelle II (Spalten 7 und 8) angegebenen Daten für Di-n-dodecyl-peroxydicarbonat (Fp. = 30 - 32 °C) und schlossen aus dem Eintrag "Decomposes violently after 90 minutes" unter dem "Safety Test" bei 40 °C, in Anbetracht dieser langen "Sicherheitsperiode" von 90 Minuten habe der Fachmann keinerlei Bedenken haben müssen, das nach dem Streitpatent vorgeschlagene Aufschmelzen und Abzentrifugieren vorzunehmen, da die Zeiten, in denen die DAPC in geschmolzenem Zustand vorliegen, nach dem Streitpatent wesentlich kürzer seien.

Die Kammer teilt diese Auffassung nicht. Für die fragliche Verbindung findet sich - wie auch für alle anderen in Dokument (12) untersuchten DAPC mit Alkylresten mit 12 und mehr C-Atomen, die bei der Prüftemperatur Feststoffe sind - für einen "Safety Test" bereits bei 30 °C die Bewertung: "Stable to rapid decomposition". Daraus entnimmt die Kammer, daß nicht vorhersehbar ist, unter welchen Bedingungen die Verbindungen sich bei 30 °C stabil verhalten und unter welchen sie sich rasch zersetzen. Diese Unberechenbarkeit dieser labilen Peroxide wäre vom Fachmann nicht als Anreiz empfunden worden, die in

Dokument (1) ausgesprochene und durch andere Dokumente gestützte Warnung zu mißachten und bei der Aufarbeitung des Reaktionsgemisches, angesichts der Gefahr der Ausbeuteminderung durch Zersetzung, auf Kühlung zu verzichten; dies umso mehr als die Labilität der DAPC durch die Gegenwart des Alkali aus der Herstellung verschärft wird, wie die Beschwerdeführerin - glaubhaft - dargelegt hat.

Die Kammer kommt daher zu dem Ergebnis, daß der Stand der Technik keine Anregung bot, zur Lösung der bestehenden Aufgabe die für Diacylperoxide aus (2) bekannte Reinigungsmethode auf das Verfahren nach Dokument (1) anzuwenden.

- 8.4.6 Auch das vom Patentgegenstand weiter abliegende Dokument (9) kann an diesem Ergebnis nichts ändern. Dort wird ein Verfahren zur Granulierung von Peroxiden, darunter auch von DAPC - wie MYPC - beschrieben, das im Erhitzen einer wäßrigen Peroxidsuspension auf eine Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes und anschließendem raschen Eingießen in ein Kühlmedium besteht. Die erhaltenen Granulate werden dann durch Abfiltrieren isoliert. Auch hier wird also gekühlt, bevor die DAPC in konzentrierter Form gewonnen werden.
- 8.5 Es folgt, daß der Stand der Technik dem Fachmann keine Anregung gab, aus der Sicht der bestehenden Aufgabe die Reaktion zur Herstellung der DAPC unter deren Schmelzpunkt durchzuführen und die DAPC aus dem auf die Schmelztemperatur erhitzten Reaktionsgemisch durch flüssigflüssig Zentrifugieren zu gewinnen. Da diese Maßnahme auf erfinderischer Tätigkeit beruht, beruht auch das diese

Maßnahme umfassende Gesamtverfahren des geltenden Anspruchs 1 allein aus diesem Grund auf erfinderischer Tätigkeit.

Die abhängigen Ansprüche 2 bis 12 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 Vorinstanz zurückverwiesen mit der Auflage, das Patent aufgrund des Anspruchs 1, eingegangen am 12. September 1990, sowie der erteilten Ansprüche 2 bis 12 und einer anzupassenden Beschreibung aufrecht zu erhalten.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

E. Görgmaier

K. Jahn