

Veröffentlichung im Amtsblatt Ja / Nein

Aktenzeichen: T 838/90 - 3.3.3

Anmeldenummer: 84 112 435.7

Veröffentlichungs-Nr.: 0 140 272

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von gegebenenfalls
: verzweigten Polyarylsulfiden mit verminderter
Korrosivität

Klassifikation: C08G 75/02

ENTSCHEIDUNG

vom 27. November 1991

Patentinhaber: BAYER AG

Einsprechender: 01) HOECHST AKTIENGELLSCHAFT
02) PHILLIPS PETROLEUM COMPANY

Stichwort:

EPÜ Artikel 56

Schlagwort: "Erfinderische Tätigkeit (nein) - naheliegende Vereinfachung"

Leitsatz



Aktenzeichen: T 838/90 - 3.3.3

ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.3
vom 27. November 1991

Beschwerdeführer:
(Einsprechender 02)

Phillips Petroleum Company
Bartlesville, Oklahoma 74004 (US)

Vertreter:

Bardehle, Heinz, Dipl.-Ing.
Patent- und Rechtsanwälte
Bardehle-Pagenberg-Dost-Altenburg-
Frohwitter-Geissler & Partner
Postfach 86 06 20
W - 8000 München 86 (DE)

Beschwerdegegner:
(Patentinhaber)

Bayer AG
Bayerwerk
W - 5090 Leverkusen 1 (DE)

weiterer Verfahrensbeteiligter
(Einsprechender 01)

Hoechst Aktiengesellschaft, Frankfurt
- Ressortgruppe Patente, Marken und Lizenzen -
W - 6230 Frankfurt am Main 80 (DE)

Angefochtene Entscheidung:

Zwischenentscheidung der Einspruchsabteilung des
Europäischen Patentamts vom 3 Mai 1990, zur Post
gegeben am 8. August 1990, über die
Aufrechterhaltung des europäischen Patents
Nr. 0 140 272 in geändertem Umfang.

Zusammensetzung der Kammer:

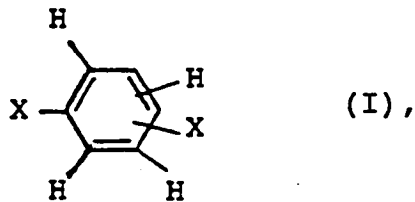
Vorsitzender: F. Antony
Mitglieder: C. Gérardin
M. Aúz Castro

Sachverhalt und Anträge

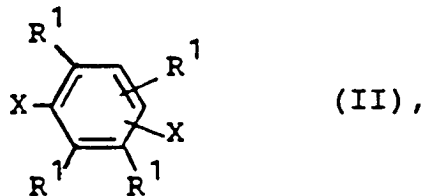
- I. Auf die europäische Patentanmeldung Nr. 84 112 435.7, die am 16. Oktober 1984 unter Inanspruchnahme der Priorität aus der Voranmeldung vom 28. Oktober 1983 in Deutschland angemeldet worden war, ist am 16. September 1987 das europäische Patent auf der Grundlage von 2 Ansprüchen erteilt worden. Anspruch 1 lautete (unter Berichtigung eines Schreibfehlers - "Cycloalkyl"):

"Verfahren zur Herstellung von hochmolekularen, gegebenenfalls verzweigten Polyarylsulfiden aus

- a) 50 - 100 Mol-% Dihalogenaromaten der Formel



und 0 - 50 Mol.-% Dihalogenaromaten der Formel



in denen

X für zueinander meta- oder paraständiges Halogen steht und

R^1 gleich oder verschieden ist und Wasserstoff, Alkyl, Cycloalkyl, Aryl, Alkylaryl, Arylalkyl sein kann, wobei zwei zueinander orthoständige Reste R^1 zu einem aromatischen oder heterocyclischen Ring verknüpft sein können und immer ein Rest R^1 verschieden von Wasserstoff ist und

- b) 0 bis 5 Mol-%, bezogen auf die Summe der Komponenten a) und b) eines Tri- oder Tetrahalogenaromaten der Formel



wobei

Ar ein aromatischer oder heterocyclischer Rest ist,

X für Chlor oder Brom und

n für die Zahl 3 oder 4 steht und

- c) Alkalisulfiden, gegebenenfalls zusammen mit Alkalihydroxiden, wobei das molare Verhältnis von (a+b):c im Bereich von 0,85:1 bis 1,15:1 liegt und
- d) einem organischen Lösungsmittel, gegebenenfalls unter Mitverwendung von Katalysatoren und/oder Cosolventien, wobei das molare Verhältnis von

Alkalisulfiden c) zu dem organischen Lösungsmittel d) im Bereich von 1:2 bis 1:15 liegt, und

- e) Wasser in Form von Hydrat- oder freiem Wasser, wobei das molare Verhältnis von c):e) im Bereich von 1:0 bis 1:13 liegt und das Verfahren bei einer Reaktions-temperatur von 160°C bis 270°C, gegebenenfalls unter Überdruck durchgeführt wird,

wobei man nach Beendigung der Umsetzung das Reaktionsgemisch in

- f) Alkohole oder Ketone oder das gleiche Lösungsmittel d), das bei der Reaktion verwendet wurde, als Fällungsmittel einträgt und anschließend wäscht,

dadurch gekennzeichnet, daß man das gefällte Produkt in der folgenden Reihenfolge wäscht:

- (1) zuerst mit Komponente f) und
- (2) abschließend mit Wasser."

Der abhängige Anspruch 2 war auf eine besondere Ausgestaltung des Verfahrens nach Anspruch 1 gerichtet.

II. Gegen die Erteilung des europäischen Patents haben die Einsprechenden 1 und 2 jeweils am 16. Juni 1988 Einspruch eingelegt und den Widerruf des Patents in vollem Umfang wegen mangelnder Neuheit und erfinderischer Tätigkeit beantragt (Artikel 100 a) EPÜ). Zur Stützung ihrer Vorbringen haben sie u. a. auf die Dokumente

(1) JP-A-55/54 330

(2) US-A-3 524 835

verwiesen.

III. Durch Zwischenentscheidung vom 3. Mai 1990, mit schriftlicher Begründung zur Post gegeben am 8. August 1990, hat die Einspruchsabteilung festgestellt, daß das Patent in geändertem Umfang aufrechterhalten werden könne, nachdem in dem kennzeichnenden Teil des Anspruchs 1 nach "Komponente f) und" das Wort "anschließend" sowie nach "Wasser" das Wort "elektrolytfrei" eingefügt worden seien. In der angefochtenen Entscheidung wird zunächst festgestellt, die Neuheit des Patentgegenstands sei in der mündlichen Verhandlung nicht mehr in Frage gestellt worden. Was die erfinderische Tätigkeit anbelange, sei Dokument (1) als der nächste Stand der Technik anzusehen, wo ein Verfahren zur Herstellung von Polyarylsulfiden (PPS) entsprechend dem Oberbegriff des Anspruchs 1 des Streitpatents beschrieben werde. Hiervon unterscheide sich der Gegenstand des Streitpatents lediglich durch eine umgekehrte Reihenfolge des Waschvorgangs, nämlich zuerst das Waschen mit dem Alkohol f) und anschließend mit Wasser elektrolytfrei. Aus den bereits im Prüfungsverfahren eingereichten Vergleichsversuchen der damaligen Anmelderin gehe eindeutig hervor, daß die bloße Umkehrung der Waschreihenfolge eine geringere Korrosivität des gereinigten PPS bewirke.

IV. Gegen die Entscheidung der Einspruchsabteilung hat die Beschwerdeführerin (Einsprechende 2) am 18. Oktober 1990 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde erhoben und hierzu am 18. Dezember 1990 eine Begründung eingereicht. Die Argumente in dieser Begründung, in einer weiteren, am 24. Oktober 1991 eingegangenen Stellungnahme und vor allem in der mündlichen Verhandlung vom 27. November 1991, zu der die ordnungsgemäß geladene Einsprechende 1 als Verfahrens-

beteiligte ebenfalls erschien, richten sich hauptsächlich gegen die Würdigung der Beispiele und Vergleichsbeispiele im Streitpatent. Dort seien weder die Menge Wasser, noch die Anzahl der Waschvorgänge angegeben, was eine Nacharbeitung des beanspruchten Verfahrens unmöglich und somit die geltend gemachten Vorteile unglaubwürdig mache. Außerdem stelle die Umkehrung der Waschreihenfolge kein erfinderisches Merkmal dar, da sie dem Waschvorgang gemäß Dokument (2) entspreche.

- V. Demgegenüber hat die Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin) in ihrer Eingabe vom 22. Juni 1991 nochmals die spezifische Reihenfolge der Waschvorgänge gemäß Streitpatent hervorgehoben. Diese Maßnahme sei erforderlich, um die korrosiven Eigenschaften von PPS deutlich zu verringern, wie es die Beispiele und Vergleichsbeispiele belegen.

An der mündlichen Verhandlung hat die Beschwerdegegnerin nicht teilgenommen.

- VI. Die Beschwerdeführerin und die weitere Verfahrensbeteiligte beantragten die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und den Widerruf des europäischen Patents.

Mit Schriftsatz vom 4. November 1991, eingegangen am 6. November 1991, hat die Beschwerdegegnerin Entscheidung nach Lage der Akte beantragt.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 sowie Regel 64 EPÜ; sie ist zulässig.

2. Die Formulierung der Ansprüche ist in formeller Hinsicht nicht zu beanstanden (Artikel 123 EPÜ).

2.1 Von der erteilten Fassung unterscheidet sich der geltende Anspruchssatz lediglich dadurch, daß in dem kennzeichnenden Teil des Anspruchs 1 nach "Komponente f) und" das Wort "anschließend" und nach "Wasser" das Wort "elektrolytfrei" eingefügt worden sind. Diese Merkmale stützen sich auf Spalte 5, Zeilen 57 bis 59 des erteilten Streitpatents bzw. Seite 11, Zeilen 19/20 der ursprünglichen Anmeldung. Ansonsten entsprechen die drei unter f) angegebenen Fällungsmittel, nämlich Alkohole, Ketone und Lösungsmittel d), dem Gegenstand der ursprünglich eingereichten Ansprüche 2 bis 4 sowie Seite 9, Zeilen 1 bis 6 der ursprünglichen Unterlagen. Was Anspruch 2 betrifft, so entspricht er der erteilten Fassung dieses Anspruchs bzw. dem ursprünglichen Anspruch 5.

2.2 Ohne die Übereinstimmung zwischen ursprünglicher Offenbarung und Wortlaut der geltenden Ansprüche in Frage zu stellen, hat die Beschwerdeführerin in der mündlichen Verhandlung jedoch eingewendet, daß Merkmale, die laut der ursprünglichen Anmeldung lediglich als "gegebenenfalls - Maßnahmen" beschrieben werden, nun als zwingende Merkmale in den Hauptanspruch aufgenommen worden seien, wodurch eine neue, ursprünglich nicht offenbarte Lehre entstanden sei. Diesem Einwand kann sich die Kammer nicht anschließen.

Wenngleich die ursprüngliche Anmeldung einen Waschvorgang mit Wasser nach Beendigung der Umsetzung der Dihalogenaromaten mit Alkalisulfiden nur als fakultative Maßnahme erwähnt (Seite 5, Zeilen 11 bis 16 und Seite 9, Zeilen 6 bis 9), so ist doch Beispiel 1 ausdrücklich zu entnehmen, daß das ausgefallene Produkt zur Entfernung von Restmengen

anorganischer Salze mit Wasser elektrolytfrei gewaschen wird (Seite 11, Zeilen 17 bis 20). Wenn nun dieses Merkmal als letzte Stufe des beanspruchten Verfahrens zwingend wird, so entspricht dies tatsächlich einer beispielhaften, sogar bevorzugten Ausführungsform dieses Verfahrens.

Das gleiche gilt für die Definition des Fällungsmittels f), die erst im Verlauf des Prüfungsverfahrens in den Hauptanspruch aufgenommen wurde (vgl. Ergebnis der Rücksprache vom 3. Juli 1986). Die Wahl zwischen Alkoholen, Ketonen und einem Lösungsmittel d), das bei der Umsetzungsreaktion verwendet wurde, entspricht den gemäß der ursprünglichen Beschreibung (Seite 5, Zeilen 11 bis 15) bevorzugten Ausführungsformen. Daß man insbesondere Alkohole und Ketone zu diesem Zwecke verwenden kann, dürfte im Hinblick auf die in Tabelle 1 und 2 genannten Fällungslösungsmittel wohl unstrittig sein.

Auch die Kombination beider oben erwähnter Merkmale ist im Einklang mit der ursprünglichen Offenbarung, insbesondere mit den Beispielen und den Tabellen, wonach das Reaktionsgemisch nach beendeter Reaktion unter kräftigem Rühren in verschiedene Fällungslösungsmittel, wie Alkohole und Ketone, eingetragen und damit gewaschen sowie anschließend mit Wasser elektrolytfrei gewaschen wird.

2.3 Aus diesen Gründen ist die Kammer der Überzeugung, daß durch die im Prüfungs- und Einspruchsverfahren vorgenommenen Änderungen im Wortlaut des Hauptanspruchs keine neue Lehre entstanden ist und somit auch kein Verstoß gegen Artikel 123 EPÜ vorliegt.

3. Das Streitpatent betrifft ein Verfahren zur Herstellung von gegebenenfalls verzweigten Polyarylsulfiden. Ein ähnliches Verfahren ist bereits im Dokument (1) beschrieben, das die Kammer wie die Einspruchsabteilung

als den nächsten Stand der Technik ansieht. Dort werden Polyhalogenaromaten und Alkalisulfide in 1,3-Dimethylimidazolidinon oder dessen Gemischen als Lösungsmittel umgesetzt (Anspruch 1); bei der Aufarbeitung wird das hergestellte Polymere zuerst durch Eintragen des Reaktionsgemisches in Methanol, dann durch Waschen mit Wasser, und anschließend wiederum mit Methanol gereinigt (Beispiele 1 bis 4). Obwohl die nachbehandelten Polyarylsulfide dadurch eine geringere Korrosivität aufweisen, bleibt die Abspaltung von sauren schwefelhaltigen Gasen beim Erhitzen über 150°C noch zu hoch, um eine Verarbeitung durch Spritzguß oder Extrusion zu ermöglichen; außerdem ist die Durchführung dieser Nachbehandlung recht aufwendig, da sie einen zweimaligen Lösungsmittelwechsel Methanol/Wasser/Methanol erfordert.

Aufgrund dieser Unzulänglichkeiten kann die dem Streitpatent zugrundeliegende Aufgabe darin gesehen werden, ein Verfahren mit vereinfachter Nachbehandlung anzugeben, wodurch die Korrosionsfähigkeit der Polyarylsulfide noch weiter verringert werden soll.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß man den letzten Waschvorgang mit Methanol wegläßt und mit Wasser elektrolytfrei wäscht.

4. Der beanspruchte Lösungsvorschlag ist keinem der genannten Dokumente zu entnehmen; er ist daher neu. Da die Neuheit des Patentgegenstands gegenüber den im Beschwerdeverfahren befindlichen Dokumenten zuletzt unbestritten ist, erübrigen sich nähere Ausführungen hierzu.
5. In der mündlichen Verhandlung haben die Beschwerdeführerin und die weitere Verfahrensbeteiligte betont, daß die am 15. März 1989 eingereichten Vergleichsversuche nicht

geeignet seien, die geringere Korrosivität der patentgemäßen nachbehandelten Polyarylsulfide unter Beweis zu stellen.

5.1 In diesem Versuchsbericht wird nach Umsetzung der Ausgangsverbindungen der Polymeransatz halbiert; beide Ansatzteile werden zunächst heiß in 3 Liter Methanol gefällt und abgesaugt. Der erste Ansatzteil wird dann nach Beispiel 2 des Streitpatents viermal mit je 10 Liter Methanol gewaschen; anschließend wird der Filterkuchen mit Wasser elektrolytfrei gewaschen. Der zweite Ansatzteil wird dagegen nach Beispiel 1 des Dokuments (1) nachbehandelt; der Filterkuchen wird zuerst mit 6 Liter Wasser, dann mit 1,5 Liter Methanol gewaschen. Die Ergebnisse in der Tabelle sollen zeigen, daß die nach dem Streitpatent gewaschenen Polyarylsulfide einen geringeren organischen Chlorgehalt, einen geringeren Chloridionengehalt und eine niedrigere Abspaltung von sauren Gasen aufweisen.

5.2 Wie die Beschwerdeführerin und die weitere Verfahrensbeteiligte zutreffend eingewendet haben, unterscheidet sich aber das Verfahren gemäß Streitpatent von dem nach Dokument (1) bekannten Verfahren nicht durch die bloße Umkehrung der Waschreihenfolge, d. h. Methanol/Wasser gemäß Streitpatent und angeblich Wasser/Methanol gemäß Dokument (1), sondern durch das Weglassen des letzten Waschvorgangs mit Methanol aus dem bekannten Verfahren. Der Vergleichsversuch bezieht sich somit auf eine Waschreihenfolge, die dem Dokument (1) nirgendwo zu entnehmen ist; schon aus diesem Grund sind die Vergleichsversuche der Beschwerdegegnerin ungeeignet.

Der zweite, ebenfalls zutreffende Einwand betrifft den Waschvorgang mit Wasser. Weder im Versuch gemäß Streitpatent, noch im geltenden Hauptanspruch wird die verwendete Menge Wasser angegeben; dort wird lediglich

gesagt, daß man den Filterkuchen mit Wasser elektrolytfrei wäscht, was praktisch bedeutet, daß man den Rückstand mit Wasser wäscht und das Wasser kontinuierlich verwirft. Ohne Angabe der Menge Wasser ist das Merkmal "elektrolytfrei" lediglich als Zielsetzung anzusehen, nicht als Lehre zum technischen Handeln.

- 5.3 Aus diesen Gründen kann der Versuchsbericht der Beschwerdegegnerin die geltend gemachten Vorteile des Verfahrens gemäß Streitpatent hinsichtlich einer geringeren Korrosivität der Polyarylsulfide nicht belegen. Somit kann auch diese Teilaufgabe für die Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit nicht berücksichtigt werden, so daß sich die oben genannte Aufgabe auf die Angabe eines vereinfachten Verfahrens reduziert.
6. Es bleibt daher noch zu untersuchen, ob die bloße Definition eines vereinfachten Verfahrens, worin der letzte Waschvorgang mit Methanol weggelassen und mit Wasser elektrolytfrei gewaschen wird, auf erfinderischer Tätigkeit beruht.
- 6.1 Aus Dokument (2) ist ein weiteres Verfahren zur Herstellung und Aufarbeitung von Polyarylsulfiden bekannt. Nach dessen Anspruch 2 werden Polyhalogenaromaten mit Alkalisulfiden in einem polaren Lösungsmittel, wie N-Methylpyrrolidon, umgesetzt. Nach Beispiel XII wird das erhaltene feste Polymer abwechselnd mit 2 Liter Methanol, dann mit 2 Liter Wasser gewaschen; dieser Waschvorgang wird dreimal wiederholt. Nach Beispiel XXIV wird die gleiche Nachbehandlung sogar sechsmal wiederholt, wobei noch unterstrichen wird, daß Methanol zuerst verwendet werden muß. Somit entnimmt der Fachmann dieser Entgeghaltung den konkreten Hinweis, daß Methanol und Wasser in dieser Reihenfolge eine geeignete Kombination zur Nachbehandlung von Polyarylsulfiden und deshalb auch eine

Alternative zu dem aus Dokument (1) bekannten Waschvorgang darstellen.

Daher lag für den Fachmann, der das Verfahren nach Dokument (1) vereinfachen wollte, nichts näher, als auf das abschließende Waschen mit Methanol zu verzichten und dafür so lange mit Wasser zu waschen, bis aus der Elektrolytfreiheit auf die praktisch vollständige Abwesenheit störender anorganischer Verunreinigungen geschlossen werden kann.

6.2 Wenngleich nach Dokument (2) mehrmals alternierend mit Methanol und Wasser gewaschen wird, so stellt dies keinen wesentlichen Unterschied zu dem Waschvorgang gemäß Streitpatent dar. Abgesehen vom Wortlaut des Hauptanspruchs im Streitpatent, der einen solchen mehrstufigen Waschvorgang gar nicht eindeutig ausschließt, wird auch nach beiden Beispielen viermal mit einem Fällungslösungsmittel gewaschen. Weiterhin, wie oben festgestellt, muß der Ausdruck "elektrolytfrei waschen" als Zielsetzung interpretiert werden, was offen läßt, wie dieser Reinheitsgrad erreicht werden soll, d. h. mit welcher Menge Wasser das Umsetzungsprodukt gewaschen und wie oft dieser Waschvorgang durchgeführt werden soll.

6.3 Auch eine restriktive Auslegung des beanspruchten Gegenstands, wonach das erhaltene Polyarylsulfid zuerst einmal mit Methanol, dann wiederholt mit Wasser bis zum elektrolytfreien Reinheitsgrad gewaschen würde, kann nicht für erfinderisch gehalten werden. Einerseits lehrt Dokument (2), daß der letzte Waschvorgang mit Wasser durchgeführt werden soll, was das Weglassen des letzten Waschvorgangs mit Methanol gemäß Dokument (1) nahelegt; andererseits sind für den Fachmann die Menge Wasser und die Anzahl der Waschvorgänge mit Wasser mit Reihenversuchen, d. h. ohne erfinderisches Zutun, leicht zu

bestimmen, so daß diese spezifische Ausführungsform ebensowenig erfinderisch ist.

- 6.4 Aus diesen Gründen kann für den gemäß Anspruch 1 beanspruchten Lösungsvorschlag keine erfinderische Tätigkeit anerkannt werden.
7. Mangels eines darauf gerichteten gesonderten Antrages fällt Anspruch 2 zusammen mit Anspruch 1, da über einen Antrag nur als ganzes entschieden werden kann. Im übrigen wurde kein besonderer Effekt geltend gemacht, aufgrund dessen die Verwendung der im Anspruch 2 genannten Lösungsmittel erfinderisch sein könnte.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Das Patent wird widerrufen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

E. Görgmaier

F. Antony