

**Interner Verteilerschlüssel:**

- (A) [ ] Veröffentlichung im ABl.  
(B) [ ] An Vorsitzende und Mitglieder  
(C) [X] An Vorsitzende

**E N T S C H E I D U N G**  
vom 25. Oktober 1999

**Beschwerde-Aktenzeichen:** T 0689/95 - 3.3.1

**Anmeldenummer:** 87101007.0

**Veröffentlichungsnummer:** 0235553

**IPC:** C07D 201/08

**Verfahrenssprache:** DE

**Bezeichnung der Erfindung:**

Verfahren zur Herstellung von Epsilon-Caprolactam

**Patentinhaber:**

BASF Aktiengesellschaft

**Einsprechender:**

DSM N.V.

**Stichwort:**

å-Caprolactam/BASF

**Relevante Rechtsnormen:**

EPÜ Art. 56

**Schlagwort:**

"Erfinderische Tätigkeit (ja) - Kombination von Merkmalen -  
nicht naheliegende Lösung"

**Zitierte Entscheidungen:**

-

**Orientierungssatz:**



Europäisches  
Patentamt

European  
Patent Office

Office européen  
des brevets

Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

Aktenzeichen: T 0689/95 - 3.3.1

**E N T S C H E I D U N G**  
**der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1**  
**vom 25. Oktober 1999**

**Beschwerdeführer:** BASF Aktiengesellschaft  
(Patentinhaber) Carl-Bosch-Straße 38  
D-67063 Ludwigshafen (DE)

**Vertreter:** -

**Beschwerdegegner:** DSM N.V.  
(Einsprechender) Postbox 605  
NL-6160 AP Geleen (NL)

**Vertreter:** -

**Angefochtene Entscheidung:** Entscheidung der Einspruchsabteilung des Europäischen Patentamts, die am 20. Juni 1995 zur Post gegeben wurde und mit der das europäische Patent Nr. 0 235 553 aufgrund des Artikels 102 (1) EPÜ widerrufen worden ist.

**Zusammensetzung der Kammer:**

**Vorsitzender:** A. J. Nuss  
**Mitglieder:** P. P. Bracke  
R. T. Menapace

## Sachverhalt und Anträge

- I. Die Beschwerde richtet sich gegen die am 19. Mai 1995 verkündete und am 20. Juni 1995 zur Post gegebene Entscheidung der Einspruchsabteilung, das europäische Patent Nr. 0 235 553 wegen mangelnder erfinderischer Tätigkeit zu widerrufen.
- II. Gegenstand der Entscheidung waren die erteilten Ansprüche 1 bis 10.

Der einzige unabhängige Anspruch lautete:

"1. Verfahren zur Herstellung von  $\alpha$ -Caprolactam durch Umsetzung Von 5-Formylvaleriansäureestern mit überschüssigem Ammoniak und Wasserstoff in Gegenwart von Hydrierkatalysatoren unter Mitverwendung von Lösungsmitteln bei erhöhter Temperatur und unter erhöhtem Druck in flüssiger Phase, dadurch gekennzeichnet, daß man

- a) 5-Formylvaleriansäureester mit überschüssigem Ammoniak und Wasserstoff unter Mitverwendung von Alkanolen als Lösungsmittel in Gegenwart von Nickel- oder Kobaltkatalysatoren unter einem Wasserstoffpartialdruck von 5 bis 1000 bei einer Temperatur von 40 bis 130 °C umsetzt,
- b) aus dem erhaltenen Reaktionsgemisch Ammoniak bis auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gew.-% und Wasserstoff entfernt,
- c) das so erhaltene Reaktionsgemisch bei einer Temperatur von 50 bis 250 °C mit der 1- bis 20-fachen

Gewichtsmenge Wasser, bezogen auf den Gesamtgehalt an 6-Amino-capronsäureester und  $\epsilon$ -Caprolactam, unter gleichzeitigem Abtrennen von Alkanolen umgesetzt und

d) das so erhaltene Reaktionsgemisch auf eine Temperatur von 150 bis 370 °C erhitzt und anschließend  $\epsilon$ -Caprolactam gewinnt."

III. Die Einspruchsabteilung war der Auffassung, daß Dokument (8) (DE-C-952 442) den nächstkommenden Stand der Technik darstellte und daß die Aufgabe, ein gegenüber dem Dokument (8) verbessertes Verfahren bereitzustellen, tatsächlich gelöst war. Da sie es für naheliegend hielt, die aus Dokument (1) (die englische Übersetzung des Dokumentes JP-A-30/5330) bekannten Verfahrensmaßnahmen auf das aus Dokument (8) bekannte Verfahren zu übertragen, war die Einspruchsabteilung der Meinung, das beanspruchte Verfahren sei durch die Lehren der Dokumente (1) und (8) nahegelegt.

IV. Eine mündliche Verhandlung vor der Beschwerdekammer hat am 25. Oktober 1999 stattgefunden.

V. Die Beschwerdeführerin hat im wesentlichen vorgetragen, den Dokumenten (1) und (8) sei weder die gleichzeitige Verwendung eines Alkanols mit Ammoniak noch die Entfernung des Ammoniaks nach der Hydrierung auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gewichtsprozent zu entnehmen. Somit würden die beanspruchten Verfahren durch die Kombination der aus den Dokumenten (1) und (8) bekannten Verfahrensmerkmale nicht nahegelegt.

VI. Die Beschwerdegegnerin (Einsprechende) hat dem entgegengehalten, die Verwendung von einem Alkanol und von

Ammoniak in einer Hydrierungsreaktion sei aus Dokument (1) bekannt und die Entfernung des Ammoniaks auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gewichtsprozent sei nicht als eine gezielte Auswahl zu betrachten und daher kein erfindungswesentliches Merkmal. Deshalb war sie der Meinung, das beanspruchte Verfahren sei durch die Lehren der Dokumente (1) und (8) nahegelegt.

VII. Die Beschwerdeführerin beantragte die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und die Aufrechterhaltung des Patents in der erteilten Fassung.

Die Beschwerdegegnerin beantragte die Zurückweisung der Beschwerde der Patentinhaberin.

### **Entscheidungsgründe**

1. Die Beschwerde ist zulässig.
  
2. Im vorliegenden Fall stellt sich allein die Frage der erfinderischen Tätigkeit, da der Einwand der mangelnden erfinderischen Tätigkeit als einziger Einspruchsgrund zum Widerruf des Streitpatents durch die Erstinstanz geführt hat.

#### 2.1 *Erfinderische Tätigkeit*

- 2.1.1 Die Kammer ist, wie die Einspruchsabteilung und die Parteien, der Ansicht, daß das in Zeile 23 der ersten Spalte des Streitpatents zitierte Dokument (8) den nächstkommenden Stand der Technik darstellt.

Dokument (8) beschreibt die Herstellung von å-

Caprolactam ausgehend von **4**-Formylvaleriansäureester.

Da jedoch nur ein **5**-Formylvaleriansäureester und nicht ein **4**-Formylvaleriansäureester zu  $\epsilon$ -Caprolactam umgesetzt werden kann, teilt die Kammer die Auffassung der Einspruchsabteilung, daß die Bezeichnung, die in dem 1956 veröffentlichten Dokument (8) verwendet wurde, nicht der heute üblichen IUPAC-Nomenklatur entspricht und Dokument (8) so zu verstehen ist, daß es die Herstellung von  $\epsilon$ -Caprolactam ausgehend von **5**-Formylvaleriansäureestern beschreibt. Dies wurde im Beschwerdeverfahren nicht mehr bestritten.

Gemäß Dokument (8) wird diese Reaktion mit überschüssigem Ammoniak und Wasserstoff in Gegenwart von Hydrierkatalysatoren in einem organischen Lösungsmittel bei Temperaturen zwischen 50 und 200 °C unter Drücken bis zu 300 atm durchgeführt. Als geeignete Lösungsmittel werden niedermolekulare Alkohole sowie cyclische Ether, wie Dioxan und Tetrahydrofuran genannt (siehe Patentanspruch in Verbindung mit Seite 1, Zeilen 7 bis 12 und Seite 2, Zeilen 1 bis 11).

Gemäß dem einzigen Beispiel wird 5-Formylvaleriansäurebutylester bei 60 °C in wasserfreiem Dioxan und in Anwesenheit von Raney-Kobalt mit Wasserstoff von 150 atü während 2 Stunden hydriert, worauf die Temperatur innerhalb von 2 Stunden auf 130 °C gesteigert wird und zum Schluß noch 2 Stunden bei 130 °C gehalten wird. So wird  $\epsilon$ -Caprolactam in einer theoretischen Ausbeute von 40 % erhalten, neben 6-Aminocapronsäurebutylester (24 % der Theorie).

2.1.2 Ausgehend vom Dokument (8) ist, wie bereits im Streitpatent angegeben (Spalte 1, Zeilen 29 bis 34), die der Erfindung zugrundeliegende Aufgabe darin zu sehen, ein Verfahren zur Herstellung von  $\alpha$ -Caprolactam, ausgehend von 5-Formylvaleriansäureestern, zur Verfügung zu stellen, das mit hohen Ausbeuten verläuft und bei dem möglichst wenig Nebenprodukte gebildet werden (d. h. die Ausbeuten sind gegenüber dem aus Dokument (8) bekannten Verfahren wesentlich höher).

2.1.3 Zur Lösung dieser Aufgabe wird das im Anspruch 1 beanspruchte Verfahren vorgeschlagen (siehe Punkt II oben).

Im Hinblick auf die Beispiele 1 und 2 des Streitpatents, gemäß denen Ausbeuten an  $\alpha$ -Caprolactam von 81,6 % bzw. 85 % erzielt werden, d. h. die wesentlich höher sind als in Dokument (8), ist es glaubhaft, daß damit die oben genannte Aufgabe gelöst worden ist. Dies hat die Beschwerdegegnerin nicht bestritten.

2.1.4 Es ist somit zu untersuchen, ob der Stand der Technik dem Fachmann Anregungen bot, die in Punkt 2.1.2 oben definierte Aufgabe dadurch zu lösen, daß die Hydrierung und die Umsetzung zu  $\alpha$ -Caprolactam gemäß den im Anspruch 1 beschriebenen Reaktionsstufen a), b), c) und d) durchgeführt werden.

2.1.5 Dem Dokument (8) ist zu entnehmen, daß niedermolekulare Alkohole sowie cyclische Ether, wie Dioxan und Tetrahydrofuran, als Lösungsmittel in der Hydrierung und der Umsetzung zu  $\alpha$ -Caprolactam geeignet sind (Seite 2, Zeilen 7 bis 9). Da jedoch

niedermolekulare Alkohole und cyclische Ether somit als gleichwertige Lösungsmittel dargestellt werden, kann ein Fachmann diesem Dokument keinen Hinweis entnehmen, daß das Lösungsmittel irgendeinen Einfluß auf die Ausbeute haben könnte.

Da außerdem gemäß Dokument (8) zwischen der Hydrierung und der Umsetzung zu  $\epsilon$ -Caprolactam weder Ammoniak noch Wasserstoff entfernt wird, kann diesem Dokument auch nicht entnommen werden, daß die Entfernung von Ammoniak und Wasserstoff die Ausbeute an  $\epsilon$ -Caprolactam beeinflussen könnte.

Somit wird das beanspruchte Verfahren durch die Lehre des Dokumentes (8) für sich genommen nicht nahegelegt.

2.1.6 Die Beschwerdegegnerin hat vorgetragen, daß im Dokument (1) sowohl die Verwendung von Methanol und Ammoniak als die Entfernung von Ammoniak nach der Hydrierung beschrieben wird und daß deshalb das beanspruchte Verfahren durch die Lehre des Dokumentes (8) zusammen mit der Lehre des Dokumentes (1) nahegelegt wird.

2.1.7 Das Dokument (1) betrifft ein Verfahren zur Herstellung von  $\epsilon$ -Caprolactam in einer Ausbeute von 80 bis 90 %, in dem ein 5-Cyanovaleriansäureester in einem Lösungsmittel in Anwesenheit eines Hydrierkatalysators mit Wasserstoff unter Druck bei 80 °C bis 160 °C hydriert wird und anschließend das entstandene 6-Aminocapronsäureester auf 180 °C bis 250 °C unter Druck erhitzt wird (siehe Seite 1, zweiten Absatz und Seite 2, zweiten Absatz). In

diesem bekannten Verfahren ist daher das Ausgangsprodukt für die Herstellung von  $\alpha$ -Caprolactam ein stickstoffhaltiges Valeriansäureesterderivat im Gegensatz zu den in Dokument (8) und im Streitpatent beschriebenen Verfahren, welche von einem 5-Formylderivat ausgehen.

Es ist unbestritten, daß sowohl gemäß dem beanspruchten Verfahren als gemäß dem in Dokument (1) beschriebenen Verfahren 6-Aminocapronsäureester als Zwischenprodukte erhalten werden. Da jedoch zur Herstellung dieser Zwischenprodukte aus den gemäß Streitpatent verwendeten 5-Formylvaleriansäureestern Ammoniak als N-Quelle unbedingt notwendig ist, während dies bei der Herstellung aus 5-Cyanovaleriansäureestern nicht der Fall ist, dient Ammoniak in dem in Dokument (1) beschriebenen Verfahren einem anderen Zweck als im beanspruchten Verfahren. Dies wird insbesondere dadurch deutlich, daß Dokument (1), Seite 1, Zeile 8 zu entnehmen ist, die Hydrierung des Cyanids zum primären Amin könne in An- oder Abwesenheit von Ammoniak durchgeführt werden. Aus diesem Grund hatte der Fachmann keinen Anlaß, Dokument (1) bei der Suche nach einer Lösung für die oben genannte Aufgabe in Betracht zu ziehen.

Weiterhin geht aus Seite 2, Zeile 20 bis 31 von Dokument (1) hervor, daß beispielsweise Alkanole, Ether und Kohlenwasserstoffe als Lösungsmittel verwendet werden können und daß 6-Aminocapronsäureester bei ruhigem Reaktionsverlauf in guter Ausbeute erhalten werden, wenn **Ether oder Kohlenwasserstoffe als Lösungsmittel zusammen mit Ammoniak verwendet werden**, wie durch die Beispiele 1

bis 7 und durch einen Vergleich der Ausbeuten gemäß Beispiel 1 und 4 mit denen gemäß Beispiel 9 und 10 bestätigt wird.

Jedoch beinhaltet die dem Fachmann hiermit vermittelte Lehre nicht, daß die für bestimmte Lösungsmittel angegebene Anwendung von Ammoniak auch bei Verwendung von anderen Lösungsmitteln, insbesondere Alkanolen, vorteilhaft ist.

Die Beschwerdegegnerin hat geltend gemacht, ein Fachmann könne dem Dokument (1) trotzdem entnehmen, daß die kombinierte Verwendung eines Alkanols mit Ammoniak die Ausbeute an  $\alpha$ -Caprolactam erhöhen würde, da in Beispiel 8 die Hydrierung von 5-Cyanovaleriansäure Methylester in Methanol und anschließende Umsetzung zu  $\alpha$ -Caprolactam beschrieben ist und aus einem Vergleich der Ausbeuten gemäß Beispiel 1 und 4 mit denen gemäß Beispiel 9 und 10 hervorgeht, daß die Ausbeute an  $\alpha$ -Caprolactam durch die Anwesenheit von Ammoniak erhöht wird.

Wie oben dargelegt, ist die Lehre von Dokument (1) jedoch darauf beschränkt, daß durch die Anwesenheit von Ammoniak 6-Aminocapronsäureester in guter Ausbeute erhalten werden, wenn die Hydrierung **in einem Ether oder einem Kohlenwasserstoff** durchgeführt wird; nirgendwo ist in diesem Dokument ein Hinweis zu finden, daß dies auch für andere Lösungsmittel gilt. Dies wird auch durch den experimentellen Teil bestätigt, wo nur ein Vergleich der Ausbeuten an  $\alpha$ -Caprolactam in An- und Abwesenheit von Ammoniak in Ethyl-n-Butyl-Ether (Beispiele 1 und 9) und in Dioxan (Beispiele 4 und 10) vorgenommen wird. Die Verall-

gemeinerung, daß die Anwesenheit von Ammoniak in jedem Lösungsmittel die Ausbeute an  $\alpha$ -Caprolactam erhöht, ist diesem Dokument nicht zu entnehmen. Somit konnte ein Fachmann Dokument (1) nicht so verstehen, daß die im Beispiel 8 angegebene Ausbeute an  $\alpha$ -Caprolactam durch die Mitverwendung von Ammoniak erhöht werden könnte.

Es war dem Dokument somit nicht zu entnehmen, daß durch die Kombination von Ammoniak mit einem C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkanol  $\alpha$ -Caprolactam in erhöhter Ausbeute bekommen werden könnte.

2.1.8 Die Beschwerdegegnerin hat berechnet, daß bei der Hydrierung gemäß den Beispielen 1 bis 7 des Dokumentes (1) der Gehalt an Ammoniak 6 bis 12 Gew.-% beträgt. Da gemäß diesen Rechenbeispielen Ammoniak zwischen der Hydrierung und der Umsetzung zu  $\alpha$ -Caprolactam entfernt wird und Ammoniak in Alkanolen bekanntlich leicht löslich ist, hat die Beschwerdegegnerin behauptet, ein Fachmann würde sich nicht bemühen Ammoniak ganz zu entfernen und somit sei Dokument (1) zu entnehmen, daß Ammoniak nach der Hydrierung bis auf einen Gehalt von 0 bis 12 Gew.-% entfernt werde. Da im Streitpatent für die Entfernung von Ammoniak bis auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gew.-% kein Vorteil angegeben wurde, könne diese Auswahl keine erfinderische Tätigkeit erfordern.

Im vorliegenden Fall ist es jedoch unerheblich, ob nach der Lehre des Dokumentes (1) ein Fachmann sich bemühen würde, Ammoniak vollständig zu entfernen. Wesentlich ist nur die Frage, ob aus der Lehre des Dokumentes (1) hervorgeht, daß für die Erzielung von

höheren Ausbeuten an  $\epsilon$ -Caprolactam die Entfernung von Ammoniak bis auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gew.-% zwischen der Hydrierung und der Umsetzung zu  $\epsilon$ -Caprolactam erforderlich ist. Da Dokument (1) aber nur zu entnehmen ist, daß Ammoniak entweder entfernt wird oder nicht und keinen weiteren Hinweis enthält, welcher Effekt mit der Entfernung von Ammoniak erreicht werden kann, war somit für den Fachmann aus Dokument (1) kein Hinweis zu entnehmen, daß die Entfernung von Ammoniak bis auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gew.-% für die Erzielung von höheren Ausbeuten an  $\epsilon$ -Caprolactam wesentlich ist.

2.1.9 Da aus Dokument (1) somit nicht hervorgeht, daß i) die Kombination von Ammoniak mit einem  $C_1$ - $C_4$ -Alkanol oder ii) die Entfernung von Ammoniak bis auf einen Gehalt von 0,1 bis 2 Gew.-%, geschweige denn die Kombination von i) und ii) zu höheren Ausbeuten an  $\epsilon$ -Caprolactam führen bzw. beitragen könnte(n), kommt die Kammer zum Schluß, daß das im Anspruch 1 beanspruchte Verfahren durch die kombinierte Lehre der Dokumente (1) und (8) nicht nahegelegt wird.

Es ist dabei unerheblich, daß sowohl die Umsetzung von 6-Aminocapronsäure als von 6-Aminocapronsäureestern zu  $\epsilon$ -Caprolactam an sich bekannt war und daher der Fachmann ins Auge gefaßt hätte, die entstandenen 6-Aminocapronsäureester erst in Gegenwart von Wasser zu hydrolysieren und anschließend zu cyclisieren. Wesentlich bei der Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit ist nur, ob ein Fachmann aus dem Stand der Technik ableiten konnte, die in 2.1.2 beschriebene Aufgabe durch ein Verfahren zu lösen, das die **gesamten Merkmale des**

**Anspruchs 1** als zwingende Maßnahmen vorschreibt. Da dies im vorliegenden Fall, wie oben dargelegt, nicht so ist, kommt die Kammer zum Schluß, daß das in Anspruch 1 beanspruchte Verfahren durch den entgegengehaltenen Stand der Technik nicht nahegelegt wird.

2.1.10 Die Verfahren der abhängigen Ansprüche 2 bis 10 betreffen besondere Ausführungsformen des im Anspruch 1 beanspruchten Verfahrens und haben daher zusammen mit diesem ebenfalls Bestand (Artikel 56 EPÜ).

2.2 Der Aufrechterhaltung des Patentes in der erteilten Fassung steht daher nichts im Wege.

### **Entscheidungsformel**

#### **Aus diesen Gründen wird entschieden:**

Die angefochtene Entscheidung betreffend das europäische Patent 0 235 553 wird aufgehoben; das Patent wird in unveränderter Form aufrechterhalten.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

E. Görgmaier

A. Nuss