

Interner Verteilerschlüssel:

- (A) Veröffentlichung im ABl.
(B) An Vorsitzende und Mitglieder
(C) An Vorsitzende
(D) Keine Verteilung

ENTSCHEIDUNG
vom 16. März 2004

Beschwerde-Aktenzeichen: T 0032/00 - 3.3.1
Anmeldenummer: 93101918.6
Veröffentlichungsnummer: 0556681
IPC: C07C 67/347
Verfahrenssprache: DE

Bezeichnung der Erfindung:

Verfahren zur Herstellung von omega-Formylalkancarbonsäureestern

Patentinhaber:

BASF Aktiengesellschaft

Einsprechender:

DSM N.V.

Stichwort:

Formylalkancarbonsäureester/BASF

Relevante Rechtsnormen:

EPÜ Art. 56

Schlagwort:

"Erfinderische Tätigkeit (nein) - naheliegende Lösung der Aufgabe"

Zitierte Entscheidungen:

-

Orientierungssatz:

-



Aktenzeichen: T 0032/00 - 3.3.1

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 16. März 2004

Beschwerdeführer: DSM N.V.
(Einsprechender) Postbus 605
NL-6160 AP Geleen (NL)

Vertreter: -

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

Vertreter: -

Angefochtene Entscheidung: Zwischenentscheidung der Einspruchsabteilung
des Europäischen Patentamts über die
Aufrechterhaltung des europäischen Patents
Nr. 0556681 in geändertem Umfang, zur Post
gegeben am 2. November 1999.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: A. J. Nuss
Mitglieder: J. M. Jonk
R. T. Menapace

Sachverhalt und Anträge

- I. Die Beschwerdeführerin (Einsprechende) hat gegen die Zwischenentscheidung der Einspruchsabteilung, mit der das europäische Patent Nr. 0 556 681 in geändertem Umfang aufrechterhalten wurde, Beschwerde eingelegt.
- II. Mit dem Einspruch war das gesamte Patent im Hinblick auf Artikel 100 a) EPÜ, insbesondere wegen fehlender Neuheit und mangelnder erfinderischer Tätigkeit, angegriffen worden. Zur Stützung des Anspruchs wurden unter anderem folgende Druckschriften angezogen:
- (2) US-A-4 748 261,
 - (4) US-A-4 801 738 und
 - (6) US-A-5 003 102.
- III. Die Einspruchsabteilung war der Auffassung, daß die in Artikel 100 a) EPÜ genannten Einspruchsgründe der Aufrechterhaltung des Patents in geändertem Umfang auf der Grundlage der am 8. Oktober 1999 eingereichten Patentansprüche nicht entgegenstünden.
- IV. Am 16. März 2004 hat eine mündliche Verhandlung vor der Kammer stattgefunden.
- V. Die zum Zeitpunkt der vorliegenden Entscheidung maßgebende Fassung des Anspruchs 1 lautet wie folgt:
- "Verfahren zur Herstellung von ω -Formyl-C₄-C₂₀-Alkan-carbonsäureestern durch Umsetzen von C₄-C₂₀-Alkencarbon-säureestern mit Kohlenmonoxid und Wasserstoff bei einer Temperatur von 30 bis 150°C in flüssiger Phase in Gegenwart von Rhodiumcarbonylkomplexen und in Gegenwart

von mindestens einem tertiären organischem Polyphosphit mit 2 bis 6 Phosphoratomen im Molekül in dem jeweils eine Bindung an jedem Phosphoratom über eine Sauerstoffbrücke an einen substituierten oder nicht substituierten mindestens zweiwertigen Arylen- oder Bisarylenrest, einen Alkylenrest, der ein Sauerstoffatom in Kette enthalten kann, oder an einen Rest mit zwei isolierten Arylresten über die Arylreste gebunden ist und zwei Bindungen an jedem Phosphoratom über eine Sauerstoffbrücke an einen substituierten oder nicht substituierten zweiwertigen Arylen-, Bisarylenrest, einen Alkylenrest oder einen Rest mit zwei isolierten Arylresten über die Arylreste gebunden sind, oder zwei Bindungen an mindestens einem Phosphoratom jeweils getrennt über eine Sauerstoffbrücke jeweils an einen einwertigen substituierten oder nicht substituierten Aryl-, Bisaryl-, Alkyl-, Aralkyl- oder Cycloalkylrest gebunden sind, dadurch gekennzeichnet, daß man als C₄-C₂₀-Alkencarbonsäureester

- a) 3-Pentensäureester oder
- b) 2-Pentensäuremethylester oder
- c) 2-Pentensäureethylester

verwendet."

Dieser Anspruch unterscheidet sich vom Anspruch 1 des Streitpatentes lediglich darin, daß die Verwendung von Gemischen aus 2-, 3- und 4-Pentensäure-ester oder Gemischen aus 3-Pentensäure C₁-C₄-Alkylester mit 4-Pentensäure C₁-C₄-Alkylester als Ausgangsverbindungen nicht mehr beansprucht wird.

VI. Die Beschwerdeführerin machte im schriftlichen Verfahren geltend, das beanspruchte Verfahren sei nicht neu im Hinblick auf die Druckschrift (2), weil die Lehre dieser Druckschrift eindeutig die Verwendung von den Ausgangsverbindungen des beanspruchten Verfahrens mitumfasse. Außerdem beruhe das beanspruchte Verfahren nicht auf eine erfinderische Tätigkeit. Ausgehend von z. B. Druckschrift (6) sei die zu lösende Aufgabe die Bereitstellung von einem weiteren Verfahren zur Herstellung von ω -Formylvaleriansäureestern gewesen. Die im Streitpatent beanspruchte Lösung dieser Aufgabe sei jedoch im Hinblick auf die Lehre der Druckschrift (2) für den Fachmann naheliegend.

VII. Die Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin) hat in der mündlichen Verhandlung vor der Kammer einen neuen Anspruchssatz vorgelegt und die Aufrechterhaltung des Streitpatents nur noch in diesem Umfange begehrt. Der neue Anspruch 1 betrifft ein Verfahren wie angegebenen im Anspruch 1 des Streitpatents, jedoch zur Herstellung von 5-Formylvaleriansäureestern durch Umsetzen von 3-Pentensäureestern als Ausgangsverbindungen.

Sie hat den Ausführungen der Beschwerdeführerin widersprochen. Bezüglich der erfinderischen Tätigkeit hat sie dabei vorgebracht, daß als nächstliegender Stand der Technik die Druckschrift (6) in Betracht komme und daß gegenüber dieser Druckschrift das Verfahren des Streitpatents den Vorteil habe, daß die erwünschten 5-Formylvaleriansäureestern unter Verwendung eines stabileren Katalysators und niedrigeren Drücken in höheren Ausbeuten erhältlich seien. Die Verwirklichung dieses Vorteils nach dem beanspruchten Verfahren sei für den Fachmann im Hinblick auf die Druckschrift (2) nicht

naheliegend gewesen, weil diese Druckschrift eindeutig lehre, daß zur Herstellung von Aldehydprodukten mit hohen n/i-Verhältnissen durch Hydroformylierung von Ausgangsverbindungen mit einer internen Doppelbindung lediglich interne Olefine geeignet seien. Die Angaben in dieser Druckschrift, daß Alkylalkenoate als Ausgangsverbindungen anwendbar seien betreffen lediglich Alkylalkenoate mit endständiger Doppelbindung. Außerdem sei die Verwendung von einem Rhodiumcarbonylkomplex anstatt eines Kobaltcarbonylkomplexes für den Fachmann nicht naheliegend, weil eine solche Auswechselung zur Entstehung von unterschiedlichen isomeren Produkten führen könnte. Zur Stütze dieser Auffassung hat sie auf die Druckschriften (4) und

(8) J. Falbe, "New Syntheses with Carbon Monoxide", Springer Verlag, New York, 1980, Seiten 116 to 123,

hingewiesen.

VIII. Die Beschwerdeführerin beantragte schriftlich die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und den Widerruf des Patents.

Die Beschwerdegegnerin beantragte, die Beschwerde zurückzuweisen und das Patent auf Grundlage der in der mündlichen Verhandlung überreichten Ansprüche 1 bis 8 aufrechtzuerhalten.

IX. Am Ende der mündlichen Verhandlung wurde die Entscheidung der Kammer verkündet.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.

2. *Änderungen*
 - 2.1 Gegen die gegenüber der Fassung der Ansprüche des Streitpatents eingeschränkten Patentansprüche 1 bis 8 bestehen keine Bedenken im Hinblick auf Artikel 123 (2) und (3) EPÜ. Auch im Hinblick auf die Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit (Punkt 4 unten) besteht kein Anlaß, darauf näher einzugehen.

3. *Neuheit*
 - 3.1 Die Kammer hat sich davon überzeugt, daß der Gegenstand des Anspruchs 1 gegenüber den entgegengehaltenen Druckschriften neu ist. Keine der Druckschriften offenbart nämlich die Herstellung von 5-Formylvaleriansäureestern durch Umsetzen von 3-Pentensäureestern in Gegenwart von einem im vorliegenden Anspruch 1 definierten Katalysatorsystem.

4. *Erfinderische Tätigkeit*
 - 4.1 Die Kammer betrachtet, im Einklang mit den Parteien im vorliegenden Verfahren, die Druckschrift (6) als nächstkommender Stand der Technik.

Diese Druckschrift beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von 5-Formylvaleriansäureestern (siehe Spalte 1, Zeilen 24 bis 41) durch

- a) Hydroformylierung von Pentensäureestern durch Umsetzen mit Kohlenmonoxid und Wasserstoff bei erhöhter Temperatur und Druck in Gegenwart von Carbonylcomplexen von Metallen der 8. Gruppe des periodischen Systems unter Bildung eines Gemisches von 5-, 4- und 3-Formylvaleriansäureestern,
- b) Abtrennen vom 5-Valeriansäureester aus dem so erhaltenen Gemisch,
- c) Spalten des im wesentlichen aus 4- und 3-Formylvaleriansäureester bestehenden Gemisches in Pentensäureester und
- d) Zurückführen der erhaltenen Pentensäureester in die Stufe a) zur Hydroformylierung.

Ausgehend von 3-Pentensäureester wird die Stufe a) bevorzugt in Gegenwart von Carbonylcomplexen von Kobalt oder Rhodium, insbesondere von Kobalt, in flüssiger Phase bei einem Druck von 90 bis 150 bar und mit einem Umsatz von 20 bis 40% durchgeführt (siehe Spalte 1, Zeilen 50 bis 60 und 65 bis 68, Spalte 2, Zeilen 5 bis 9 und 13 bis 17, und die Beispiele 1 bis 8). Nach diesem Verfahren können 5-Formylvaleriansäureester mit einer Selektivität von etwa 69% hergestellt werden (siehe Tabelle 1, Beispiele 6 bis 8). Außerdem kann durch die Rückführung des Pentensäureestergemisches zur Hydroformylierung gemäß der Stufe d), der 3-Pentensäureester, ohne zusätzliche Isomerisierung zum 4-Pentensäureester, weitgehend in den 5-Formylvaleriansäureester überführt werden (siehe Spalte 1, Zeilen 42 bis 45, und Spalte 7, Zeilen 46 bis 50).

4.2 Hinsichtlich der von der Beschwerdegegnerin gegenüber diesem nächstkommenden Stand der Technik vorgebrachten Vorteile besteht die streitpatentgemäße Aufgabe darin, ein Verfahren zur Herstellung von 5-Formylvaleriansäureester durch Hydroformylierung von 3-Pentensäureester zur Verfügung zu stellen, bei dem die erwünschten Verbindungen bei höherem Umsatz mit verbesserter Selektivität erhalten werden, die Reaktion unter mäßigen Überdruck verläuft und die verwendeten Katalysatoren eine adäquate Stabilität aufweisen (siehe auch das Streitpatent, Seite 2, Zeilen 19 bis 22).

Ausweislich der Beispiele 1 bis 14, 18 und 19 des Streitpatents in der erteilten Fassung wird diese Aufgabe auch glaubhaft gelöst.

4.3 Es ist nun zu untersuchen, ob der Stand der Technik dem vor der oben definierten Aufgabe stehenden Fachmann Anregungen bot, diese gemäß Anspruch 1 des Streitpatents und insbesondere durch die Verwendung eines Katalysatorsystems aus einem Rhodiumcarbonylkomplex und einem tertiären organischen Polyphosphit zu lösen.

4.4 Die Druckschrift (6) offenbart - wie oben angegeben - die Hydroformylierung von 3-Pentensäureester in Gegenwart von Carbonylcomplexen von Kobalt oder Rhodium, insbesondere von Kobalt. Diese Druckschrift gibt daher keinerlei Anregung, zur Lösung der hier bestehenden Aufgabe als geeignetes Katalysatorsystem einen Rhodiumcarbonylkomplex in Kombination mit einem im Anspruch 1 des Streitpatents definierten tertiären organischen Polyphosphit zu verwenden.

4.5 Die ferner angezogene Druckschrift (2) beschreibt die Herstellung von Aldehyden durch Hydroformylierung von endständigen oder internen Olefinen (siehe Spalte 2, Zeilen 2 bis 12 und Spalte 66, Zeilen 11 bis 54) mit Kohlenmonoxid und Wasserstoff bei einer Temperatur von 50 bis 120°C (siehe Spalte 70, Zeilen 57 bis 68) in flüssiger Phase (siehe Spalte 3, Zeilen 57 bis 61, und Spalte 66, Zeile 50 bis Spalte 67, Zeile 27) in Gegenwart von Rhodiumcarbonylkomplexen und von mindestens einem tertiären organischem Polyphosphit (siehe Spalte 4, Zeilen 8 bis 29, und Spalte 72, Zeile 52 bis Spalte 73, Zeile 30). Es ist unstrittig, daß das in dieser Druckschrift offenbarte Katalysatorsystem aus Rhodiumcarbonylkomplex und tertiärem Polyphosphit dem des Streitpatentes entspricht.

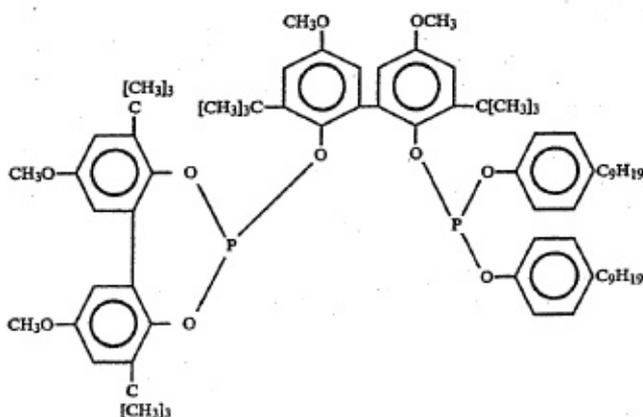
Die Druckschrift (2) lehrt insbesondere:

- a) daß aufgrund der besonderen Struktur des Bis-Phosphit-Ligandes im verwendeten Katalysatorsystem die Aldehydprodukte, sowohl mit endständig als mit intern olefinisch ungesättigten Ausgangsverbindungen, mit sehr hohen n/i-Verhältnissen erhältlich sind (siehe Spalte 2, Zeilen 5 bis 11; Spalte 62, Zeile 64 bis Spalte 64, Zeile 12; Spalte 69, Zeilen 52 bis 57, und Spalte 71, Zeilen 15 bis 22),
- b) daß endständige und intern olefinisch ungesättigte Alkylakenoate als Ausgangsverbindungen geeignet sind (siehe Spalte 66, Zeilen 11 bis 39),
- c) daß die Hydroformylierung bei niedrigem Druck durchgeführt werden kann (siehe Spalte 70, Zeilen 38

bis 45) und mit hohen Reaktionsgeschwindigkeiten verläuft (siehe Spalte 63, Zeilen 29 bis 35), und

d) daß das eingesetzte Katalysatorsystem stabil ist (siehe Spalte 1, Zeilen 63 bis 67, Spalte 71, Zeilen 15 bis 22, und die Beispiele).

Entsprechend dieser Lehre beschreibt Beispiel 11 die Hydroformylierung von 2-Buten bei einer Temperatur von 94°C bis 102°C und einer Druck von 160 psig (11 bar) während 15 Tagen kontinuierlicher Umsetzung, in der unter Verwendung eines Katalysatorsystems aus Rhodium in der Form der Komplexverbindung $Rh(CO)_2acac$ (acac = Acetylacetonat) und einem Bis-Phosphit der Formel



d. h. unter Verwendung eines Katalysatorsystems wie eingesetzt in Beispiel 18 des Streitpatents, die C₅-Aldehyde in einem n/i-Verhältnis von etwa 20 bis 35 erhalten werden (siehe insbesondere die Tabelle 11).

4.6 Diese Druckschrift mußte daher den Fachmann, der sich zum Ziel gesetzt hat, die oben definierte technische Aufgabe zu verwirklichen, dazu anregen, hierzu das Katalysatorsystem aus Rhodiumcarbonylkomplex und

tertiärem Polyphosphit gemäß dem vorliegenden Anspruch 1 des Streitpatents einzusetzen.

- 4.7 Nach Auffassung der Beschwerdegegnerin hätte der Fachmann aus der Druckschrift (2) jedoch keine Anregung bekommen, die Hydroformylierung von einem 3-Pensäureester zur selektiven Herstellung von einem 5-Formylvaleriansäureester unter Verwendung des darin beschriebenen Katalysatorsystems durchzuführen. Die Druckschrift lehre nämlich eindeutig, daß zur Herstellung von Aldehydprodukten mit hohen n/i-Verhältnissen durch Hydroformylierung von Ausgangsverbindungen mit einer internen Doppelbindung lediglich interne Olefine geeignet seien. Außerdem beträfen die Angaben bezüglich der Geeignetheit von Alkylalkenoaten als Ausgangsverbindungen lediglich Alkylalkenoate mit endständiger Doppelbindung.

Dieser Auffassung kann sich die Kammer nicht anschließen, denn die Druckschrift (2) beschreibt, daß die olefinisch ungesättigten Ausgangsverbindungen sowohl endständig als intern ungesättigt sein können und daß solche Ausgangsverbindungen Gruppen oder Substituenten, wie z. B. eine Oxycarbonylgruppe, enthalten können, welche die Hydroformylierung nicht wesentlich stören (siehe Spalte 66, Zeilen 11 bis 22). Beispielhaft für geeignete olefinisch ungesättigten Ausgangsverbindungen sind unter anderem alpha-Olefine, interne Olefine und Alkylalkenoate genannt worden (siehe Spalte 66, Zeilen 22 bis 26). Zwar sind als Beispiele für geeignete Alkylalkenoate lediglich Methylmethacrylate und n-Propyl-7-octenoate genannt worden (siehe Spalte 66, Zeilen 37 und 39) und ist ebenfalls angegeben worden, daß die offenbarte Erfindung bevorzugt die

Hydroformylierung von alpha-Olefinen und internen Olefinen betrifft (siehe Spalte 66, Zeilen 44 bis 49, und die Beispiele), aber unter Berücksichtigung der Offenbarung der Druckschrift als ganze ist ihre technische Lehre eindeutig nicht auf die Verwendung solcher Ausgangsverbindungen beschränkt.

- 4.8 Gestützt auf die Druckschriften (4) und (8) hat die Beschwerdegegnerin auch noch geltend gemacht, daß die Verwendung von einem Rhodiumcarbonylkomplex anstatt eines Kobaltcarbonylkomplexes für den Fachmann nicht naheliegend gewesen sei, weil eine solche Auswechslung zur Entstehung von unterschiedlichen isomeren Produkten führen könnte.

Tatsächlich hatte der Fachmann jedoch keinerlei Grund anzunehmen, daß mit tertiären, organischen Phosphiten oder Phosphinen modifizierte Rhodiumcarbonylkomplexe keine effektive Katalysatorsysteme für die Hydroformylierung von Alkylalkenoaten sein könnten. Diese Auffassung wird durch die Angaben bezüglich des Standes der Technik im Streitpatent (siehe Seite 2, Zeilen 8 bis 11) und z. B. durch die Druckschriften (4) (siehe Spalte 1, Zeilen 21 bis 54) und (8) (siehe die Tabelle 1.46 auf Seite 120) bestätigt.

Zwar kann aus den Druckschriften (4) und (8) - wie von der Beschwerdegegnerin vorgebracht - entnommen werden, daß die Selektivität zu geradkettigen Hydroformylierungsprodukten problematisch sein könnte, aber die Druckschrift (2) befaßt sich - wie oben dargelegt - gerade mit diesem Problem und lehrt, daß durch die Verwendung eines Katalysatorsystems wie es im vorliegenden Streitpatent beansprucht wird, sowohl mit

endständig als mit intern olefinisch ungesättigten Ausgangsverbindungen einschließlich Alkylalkenoaten eine deutliche Verbesserung des Anteils an geradkettigen Verbindungen in Kombination mit den übrigen erwünschten Vorteilen erreicht werden kann.

- 4.9 Im Zusammenhang mit den oben gemachten Ausführungen weist die Kammer schließlich noch darauf hin, daß nach ständiger Rechtsprechung der Beschwerdekammern eine Maßnahme als naheliegend im Sinne des Artikels 56 EPÜ angesehen werden kann, wenn der Fachmann sie in der Erwartung einer gewissen Verbesserung oder eines Vorteils vorgenommen hätte. Mit anderen Worten, eine Lösung einer technischen Aufgabe ist nicht nur dann naheliegend, wenn die Ergebnisse klar vorhersehbar sind, sondern auch dann, wenn realistisch mit einem Erfolg gerechnet werden kann.
- 4.10 Aus diesen Gründen beruht der Gegenstand nach dem vorliegenden Anspruch 1 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

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

Der Geschäftsstellenbeamte:

Der Vorsitzende:

N. Maslin

A. Nuss