

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 290/89 - 3.3.1

Anmeldenummer / Filing No / N^o de la demande : 84 810 570.6

Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N^o de la publication : 0 143 750

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von 4-Nitrotoluol-2-Sulfonsäure

Title of invention:

Titre de l'invention :

Klassifikation / Classification / Classement : C07C 143/55

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du 17. Juli 1990

Anmelder / Applicant / Demandeur :

Patentinhaber / Proprietor of the patent / Ciba-Geigy AG

Titulaire du brevet :

Einsprechender / Opponent / Opposant : Bayer AG

Stichwort / Headword / Référence : Nitrotoluolsulfonsäure/CIBA-GEIGY

EPÜ / EPC / CBE Art. 56

Schlagwort / Keyword / Mot clé : "Erfinderische Tätigkeit (ja)"

Leitsatz / Headnote / Sommaire

Europäisches
Patentamt

Beschwerdekammern

European Patent
Office

Boards of Appeal

Office européen
des brevets

Chambres de recours



Aktenzeichen: T 290/89 - 3.3.1

ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 17. Juli 1990

Beschwerdeführer:
(Einsprechender)

Bayer AG, Leverkusen
Konzernverwaltung RP
Patentabteilung
Bayerwerk
D-5090 Leverkusen

Vertreter:

Beschwerdegegner:
(Patentinhaber)

CIBA-GEIGY AG
Klybeckstrasse 141
CH-4002 Basel

Vertreter:

TER MEER - MÜLLER - STEINMEISTER & PARTNER
Mauerkircherstrasse 45
D-8000 München 80

Angefochtene Entscheidung:

Entscheidung der Einspruchsabteilung des
Europäischen Patentamts vom 8. März 1989, mit der
der Einspruch gegen das europäische Patent Nr.
0 143 750 aufgrund des Artikels 102 (2) EPÜ
zurückgewiesen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn

Mitglieder: R. Spangenberg
G. Paterson

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die am 22. November 1984 unter Beanspruchung der Priorität einer Voranmeldung in der Schweiz vom 28. November 1983 eingereichte europäische Patentanmeldung 84 810 570.6 wurde das europäische Patent 143 750 aufgrund von fünfzehn Patentansprüchen erteilt. Der Hinweis auf die Patenterteilung wurde am 22. April 1987 im Patentblatt 87/17 bekannt gemacht.

Der einzige unabhängige Patentanspruch hat folgenden Wortlaut:

"Verfahren zur Herstellung von 4-Nitrotoluol-2-sulfonsäure durch Sulfonierung von 4-Nitrotoluol mit Oleum, dadurch gekennzeichnet, daß die Sulfonierung mit 50-85 %igem Oleum kontinuierlich durchgeführt und in der Reaktionsmasse, zu welcher 4-Nitrotoluol und Oleum zudosiert werden, der Umsetzungsgrad von 4-Nitrotoluol während der gesamten Reaktionsdauer auf > 90 % gehalten wird.

- II. Mit einem am 11. Dezember 1987 gegen die Erteilung dieses Patents erhobenen Einspruch wurde der Widerruf des Patents, im wesentlichen mangels erfinderischer Tätigkeit, beantragt. Dieser Antrag stützte sich auf sieben Dokumente, von denen für die zu treffende Entscheidung nur noch die folgenden eine Rolle spielten:

(1) EP-A-83 555

(3) DD-A-140 206

(7) EP-A-18 541

- III. Mit Entscheidung vom 8. März 1989 hat die Einspruchsabteilung des Europäischen Patentamts den Einspruch zurückgewiesen. In dieser Entscheidung wird ausgeführt, daß die Druckschriften (1) und (7) die Sulfonierung von 4-Nitrotoluol (PNT) mit gasförmigem Schwefeltrioxid betreffen und somit für die Lösung der dem angegriffenen Patent zugrundeliegenden Aufgabe, das aus z. B. (3) bekannte Verfahren zur Herstellung von 4-Nitro-toluol-2-sulfonsäure (PNTS) durch Sulfonierung mittels Oleum zu verbessern, keinerlei Anregung bieten konnten. Zwar sei in (1) die Umsetzung von PNT mit gasförmigem Schwefeltrioxid in Gegenwart von Schwefelsäure beschrieben, diese Arbeitsweise sei aber nicht äquivalent zur Umsetzung von PNT mit Oleum, einem flüssigen Gemisch aus Schwefelsäure und Schwefeltrioxid. Keine der Druckschriften lehre auch das zweite erfindungswesentliche Merkmal, nämlich die Aufrechterhaltung eines Umsetzungsgrades von 90 % oder mehr während der gesamten Reaktionsdauer. Nur in Kombination mit dieser Maßnahme führe die Umsetzung von PNT mit höherprozentigem Oleum jedoch zum Erfolg.
- IV. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin (Einsprechende) am 25. April 1989 unter gleichzeitiger Zahlung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde erhoben und diese am 15. Juni 1989 begründet. Am 17. Juli 1990 hat eine mündliche Verhandlung stattgefunden.
- V. Die Beschwerdeführerin hat vorgetragen, aus (1) und (7) ergebe sich, daß die Sulfonierung von PNT mit Schwefeltrioxid in Gegenwart von Schwefelsäure bzw. in Abwesenheit irgendeines Verdünnungsmittels gelinge. Demgegenüber habe das behauptete "Vorurteil" gegen die Anwendung eines höher konzentrierten Oleums, das auf der Oxidierbarkeit der Methylgruppe des PNT beruhen sollte, die zu Nebenreaktionen und Schwarzfärbung führe, nicht bestanden, denn reines Schwefeltrioxid sei aggressiver als

Oleum. Mit der Verwendung von "100 %igem Oleum", nämlich reinem Schwefeltrioxid, sei auch die Aufgabe der Vermeidung von Abfallschwefelsäure bereits gelöst. In (1), das als nächster Stand der Technik anzusehen sei, werde auch bereits die Umsetzung in Gegenwart von ausreagierte Reaktionsmischung in einer 90 % übersteigenden Menge, allerdings nicht während der gesamten Reaktionsdauer, implizit beschrieben. Außerdem werde in (1) schon darauf hingewiesen, daß die Sulfonierung von PNT auch mit 65 %igem Oleum gelinge, wenn das PNT vor der Zugabe des Oleums mit Sulfoniermasse verdünnt werde. Schließlich wurde noch auf

(8) DE-A-2 837 459

Bezug genommen, in der ein kontinuierliches Verfahren zur Herstellung von Toluolsulfonsäure durch Umsetzung von Toluol mit Schwefeltrioxid in einem zu mehr als 90 % ausreagierten Reaktionsgemisch beschrieben sei.

VI. Die Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin) hat diesen Ausführungen entgegengehalten, daß der gesamte Stand der Technik zeige, daß die Sulfonierung von PNT ein intensiv bearbeitetes Problem darstelle. Die Fachwelt habe jedoch den dem Streitpatent zugrundeliegenden Lösungsweg trotz intensiver Bemühungen nicht gefunden, sondern den völlig anderen Weg der Verwendung von Schwefeltrioxid beschritten. Die Anwendung von Oleum in höheren Konzentrationen sei bisher an der unerwünschten Schwarzfärbung der Reaktionsprodukte gescheitert, die erst durch das Verfahren des Streitpatents vermieden werden konnte. Gasförmiges Schwefeltrioxid sei auch weit weniger aggressiv als das im Oleum vorliegende flüssige Schwefeltrioxid. Daher könne aus (1) und (7) nicht gefolgert werden, daß mit höher konzentriertem Oleum die Sulfonierung ohne Schwarzfärbung möglich sei.

VII. Die Beschwerdeführerin beantragt die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und den Widerruf des Patents.

Die Beschwerdegegnerin beantragt, die Beschwerde zurückzuweisen.

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

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Erfordernissen der Artikel 106 - 108 EPÜ sowie der Regel 64; sie ist daher zulässig.
2. Die Kammer hat sich davon überzeugt, daß der Gegenstand des Streitpatents gegenüber den entgegengehaltenen Druckschriften neu ist. Da dieser Sachverhalt nicht strittig ist, erübrigen sich nähere Ausführungen hierzu.
3. Bei der Untersuchung der Frage, ob auch die erforderliche erfinderische Tätigkeit gegeben ist, geht die Kammer von der bekannten Sulfonierung von PNT mit niedrig konzentriertem Oleum aus, wie sie etwa in (3), Beispiel 1, beschrieben ist. Dort wird mit 28 %igem Oleum in einer Rührkesselkaskade gearbeitet. Diese Arbeitsweise wird in (1) als das "ursprüngliche Standardverfahren" bezeichnet, das den ökonomischen Nachteil hat, ein Reaktionsprodukt mit einem hohen Gehalt an Schwefelsäure zu liefern. Die nach Abtrennung der PNTS verbleibende saure Mutterlauge muß nämlich wieder aufgearbeitet oder beseitigt werden (Seite 2, Zeilen 4 -12). Die an sich einfachste Möglichkeit zur Verringerung der Schwefelsäuremenge, nämlich die Verwendung eines Oleums mit höherem SO₃-Gehalt (über 40 %) führt hingegen zu Ausbeuteverlust und schwarz

gefärbten Produkten, die für die direkte Weiterverarbeitung ungeeignet sind (Seite 2, Zeilen 12-20 und Seite 8, Zeilen 4-9).

Es hat, wie sich aus den zahlreichen im Einspruchs- und Beschwerdeverfahren angezogenen Druckschriften entnehmen läßt, nicht an Versuchen gefehlt, die Sulfonierung von PNT unter Bedingungen durchzuführen, die ein weniger schwefelsäurehaltiges Produkt ergeben, das ohne weitere Reinigung z. B. zu 4,4'-Dinitrostilben-2,2'-disulfonsäure (DNS), einem wichtigen Ausgangsmaterial zur Herstellung von optischen Aufhellern, weiterverarbeitet werden kann (siehe (1), Seite 1, 2. Absatz). Praktisch allen diesen Verfahren ist gemeinsam, daß als Sulfonierungsmittel nicht Oleum, sondern SO_3 verwendet wird (vgl. (1), Seite 2, letzter Absatz).

Die Richtigkeit dieser Darstellung des Standes der Technik, die mit derjenigen im Streitpatent (Spalte 1, Zeile 1 bis Spalte 3, Zeile 15) im wesentlichen übereinstimmt, wurde von der Beschwerdeführerin nicht bestritten. Davon ausgehend, wird jedoch auch in (1) ein modifiziertes Verfahren vorgeschlagen, bei dem als Sulfonierungsmittel wiederum gasförmiges SO_3 verwendet wird. Da das Streitpatent ein Oleum-Verfahren betrifft, qualifiziert sich das in (1) angegebene Verfahren nicht als nächster Stand der Technik. In (1) Seite 2, Zeilen 20-24 ist ferner nur mit einem Satz ein Vorschlag erwähnt, 65 %iges Oleum zu verwenden und dabei das PNT mit ausreagierter Sulfonierungsmasse zu verdünnen. Die Beschwerdegegnerin, die auch Anmelderin von (1) ist, hat hierzu in der mündlichen Verhandlung versichert, daß auch diese Arbeitsweise zu schwarz gefärbten Produkten führt, wenn man nicht den Umsetzungsgrad von mindestens 90 %

gemäß Streitpatent aufrecht erhält. Daher betrachtet die Kammer auch diesen Stand der Technik nicht als den nächsten.

4. Gegenüber dem üblichen Verfahren zur Sulfonierung von PNT mit 20-30 %igem Oleum kann in Übereinstimmung mit den Angaben im Streitpatent Spalte 2, Zeile 60 bis Spalte 3, Zeile 1 und Spalte 4, Zeilen 35-44 die bestehende technische Aufgabe darin gesehen werden, ein Verfahren zur Sulfonierung von PNT mit Oleum anzugeben, bei dem die Menge an Abfallschwefelsäure reduziert ist und das ein Produkt liefert, das ohne weitere Reinigung, insbesondere ohne Abtrennung von farbigen Nebenprodukten, zu DNS weiterverarbeitet werden kann.
5. Zur Lösung dieser Aufgabe wird gemäß Streitpatent vorgeschlagen, die Sulfonierung mit 50-85 %igem Oleum kontinuierlich vorzunehmen und dabei in der Reaktionsmasse, zu der PNT und Oleum zudosiert werden, den Umsetzungsgrad des PNT während der gesamten Reaktionsdauer auf mindestens 90 % zu halten.

In diesem Zusammenhang bezieht sich der Begriff "Umsetzungsgrad" auf den stationären Zustand (nach Beendigung der Anfahrphase) des kontinuierlichen Verfahrens und auf die gesamte Reaktionsmasse. Mit anderen Worten besagt diese Vorschrift im Prinzip, daß die Reaktionsmasse zu keinem Zeitpunkt mehr als 10 % PNT enthalten darf. Diese Definition des Begriffs "Umsetzungsgrad", die sich von derjenigen bei Verfahren unterscheidet, bei denen die ausreagierte Reaktionsmasse nicht teilweise wieder in die Umsetzung zurückgeführt wird, ist nach den übereinstimmenden Ausführungen der Verfahrensbeteiligten im geltenden Zusammenhang allgemein üblich.

6. Aufgrund der Angaben in den Beispielen der Streitpatentschrift ist glaubhaft, daß die bestehende Aufgabe mit den vorgeschlagenen Maßnahmen gelöst wird. Dies ist auch von der Beschwerdeführerin nicht bestritten worden.
7. Es ist daher zu untersuchen, ob der Stand der Technik dem Fachmann Anregungen bot, im Hinblick auf die zu lösenden Aufgabe das Verfahren gemäß Streitpatent in Betracht zu ziehen.
 - 7.1 Hierbei ist nach Überzeugung der Kammer nur Stand der Technik zu berücksichtigen, der sich direkt auf die Sulfonierung von PNT bezieht. Druckschriften, die sich - wie (8) - nur allgemein mit der Sulfonierung von aromatischen Kohlenwasserstoffen befassen, sind wenig hilfreich, da PNT Eigenschaften hat, die seine Sulfonierung besonders schwierig gestalten. So ist durch die Anwesenheit der Nitrogruppe die Sulfonierung gegenüber beispielsweise Toluol erschwert und benötigt schärfere Reaktionsbedingungen, unter denen Nebenreaktionen der Methylgruppe eine größere Rolle spielen. Aus diesem Grunde hält die Kammer die im Beschwerdeverfahren erstmals genannte Druckschrift (8), in der keine spezifischen Angaben über die Sulfonierung von PNT enthalten sind, nicht für relevant. Diese Druckschrift wird zwar in der Streitpatentschrift erwähnt; sie gilt damit aber nicht automatisch als innerhalb der Einspruchsfrist, also rechtzeitig, vorgebrachtes Beweismittel (siehe z. B. T 198/88 vom 3. August 1989, Leitsätze veröffentlicht im Abl. EPA 4/1990) und braucht somit gemäß Artikel 114 (2) EPÜ nicht berücksichtigt zu werden.
 - 7.2 Die Kammer vermag auch dem Argument der Beschwerdeführerin nicht zu folgen, SO_3 sei als Sulfonierungsmittel mit 50-85 %igem Oleum vergleichbar, da es praktisch "100 %iges Oleum" darstelle. In Oleum liegt das SO_3 bekanntlich

(siehe z. B. Cotton-Wilkinson, Advanced Inorganic, Chemistry, 4. Auflage, New York 1980, Seite 246) chemisch gebunden im wesentlichen in Form von Polyschwefelsäuren vor. Gasförmiges SO_3 hat daher als Sulfonierungsmittel andere Eigenschaften als Oleum. Insbesondere ist gasförmiges SO_3 nicht aggressiver als Oleum. Dies folgt schon aus dem zum allgemeinen Fachwissen zu rechnenden und auch von der Beschwerdeführerin eingeräumten Umstand, daß Sulfonierungen mit gasförmigem SO_3 normalerweise langsamer verlaufen oder höhere Temperaturen erfordern als Sulfonierungen mit Oleum.

Aus diesem Grund ist die Kammer davon überzeugt, daß der Fachmann, der nach einer Verbesserung des aus (3) bekannten Verfahrens zur Sulfonierung von PNT mittels Oleum sucht, Dokumente, die - wie (7) - die Verbesserung der Sulfonierung von PNT mit gasförmigem SO_3 betreffen, nicht in Betracht gezogen hätte. Überdies wird in (7) keine Lösung der Aufgabe angeboten, PNTS in einem Reinheitsgrad herzustellen, der die direkte Weiterverarbeitung zuläßt; denn die nur wenig gefärbten Produkte nach Beispiel 2 und 3 werden erhalten, indem man das Rohprodukt nach der Sulfonierung einer Reinigung durch mehrmalige Extraktion mit Toluol unterwirft.

- 7.3 Aus den vorstehend genannten Gründen ist auch fraglich, ob der Fachmann Dokument (1), das ebenso wie (7) die Sulfonierung mit SO_3 betrifft, im Hinblick auf Anregungen zur Verbesserung der Sulfonierung von PNT mittels Oleum näher analysiert hätte. Selbst wenn man dies jedoch zugunsten der Beschwerdeführerin annehmen wollte, so wäre er durch den weiteren Inhalt dieses Dokuments nicht zu der im Streitpatent vorgeschlagenen Problemlösung hingeführt worden. Die Argumentation der Beschwerdeführerin, wonach die in (1) gelehrte Anwesenheit untergeordneter Mengen von Schwefelsäure in der Reaktionsmasse hätte vermuten lassen,

daß es sich hierbei im Grunde genommen um eine Sulfonierung mit Oleum handele, übersieht, daß das für die Umsetzung gemäß (1) benötigte SO_3 vorzugsweise aus Oleum gewonnen wird (siehe Seite 8, letzter Absatz). Eine solche Maßnahme wäre sinnlos, könnte man anstelle von SO_3 in Gegenwart einer geringen Menge Schwefelsäure ohne weiteres das Oleum selbst einsetzen. Zudem ist die Funktion der Schwefelsäure in (1) klar definiert. Sie soll nämlich die Bildung der Nebenprodukte Sulfoxid und Anhydrid verhindern und die Reaktionsmasse flüssig halten (Seite 7, Zeilen 1-4). Überdies enthält Oleum kein freies SO_3 , sondern Polyschwefelsäuren. In (1) wird zwar auf Seite 8, Zeilen 1-4 ausgeführt, daß die Gesamtmenge an Schwefelsäure und SO_3 unter bestimmten Voraussetzungen "ungefähr 85 %igem Oleum äquivalent" sei. Der darauffolgende Satz stellt jedoch klar, daß diese Äquivalenz nur stöchiometrisch zu verstehen ist, da es beim Kontakt von PNT mit mehr als 40 %igem Oleum zur Karbonisierung (Schwarzfärbung) kommt. Die Kammer kann somit in (1) keine Grundlage für die Behauptung finden, unter den dort genannten Bedingungen würde aus Schwefelsäure und SO_3 zunächst hochprozentiges Oleum entstehen, das dann mit PNT reagiert. Unter diesen Umständen wäre der Fachmann eher davon abgehalten worden, zur Lösung der bestehenden Aufgabe höher konzentriertes Oleum als Sulfonierungsmittel in Betracht zu ziehen.

- 7.4 Auch der schon erwähnte allgemeine Hinweis auf den Stand der Technik in (1), Seite 2, Zeilen 20 bis 24, wonach der Einsatz von 65 %igem Oleum bei Verdünnung des PNT mit ausreagierter Sulfonierungsmasse vorgeschlagen worden sei, bot keine Anregung zur Lösung der hier bestehenden Aufgabe. Diese Aussage steht völlig isoliert und enthält keine Angaben über das sich einstellende Ergebnis. Selbst wenn man aber aus dem Zusammenhang mit der vorangehenden Bemerkung über die bei Verwendung eines so konzentrierten

Oleums stets beobachtete Schwarzfärbung und Ausbeuteminderung vermuten wollte, daß bei dieser Arbeitsweise eine etwas geringere Schwarzfärbung und bessere Ausbeute erzielbar wäre, so wäre auf jeden Fall überraschend, daß ab einem bestimmten hohen Verdünnungsgrad, nämlich dem einem wie in Punkt 5 definierten "Umsetzungsgrad" von mindestens 90 % entsprechenden, ein Produkt erhalten werden könne, das so wenig gefärbt ist, daß eine zusätzliche Reinigung vor der Weiterverarbeitung entfallen kann. In der mündlichen Verhandlung hat die Beschwerdeführerin ausdrücklich versichert, daß bei einem höheren Gehalt an PNT als gemäß Streitpatent vorgesehen kein direkt weiterverarbeitbares Produkt erhalten wird. Die Beschwerdeführerin hat diesen Sachverhalt nicht bestritten und ihrerseits erklärt, daß sie nicht behaupten wolle, der Fachmann sei allein durch diese allgemeine Angabe in (1) in die Lage versetzt worden, die unerwünschte Schwarzfärbung zu vermeiden. Selbst wenn der Fachmann also durch diesen in (1) ohne Angabe einer Fundstelle als Stand der Technik bezeichneten Hinweis dazu angeregt worden sein sollte, im Verfahren nach (3), Beispiel (1) das eingesetzte PNT mit einem Teil des Sulfonierungsprodukts zu verdünnen und das 28 %ige Oleum durch 65 %iges zu ersetzen, hätte er nicht gezielt den gemäß Streitpatent erforderlichen hohen "Umsetzungsgrad" gewählt und wäre somit allein aufgrund dieser Anregung nicht zur Lösung der bestehenden Aufgabe gelangt.

8. Diese Wahl des erfindungswesentlichen Verdünnungsgrades kann auch angesichts der Tatsache, daß unbestreitbar PNTS ein großtechnisches Produkt ist, von dem jährlich tausende von Tonnen zwecks Weiterverarbeitung zu optischen Aufhellern hergestellt werden, (siehe (1) Seite 1, zweiter Absatz), nicht als das naheliegende Ergebnis routinemäßiger Versuche bezeichnet werden.

Die der Kammer vorliegenden Druckschriften zeigen im Gegenteil, daß die Fachwelt fortlaufend um Lösungen für das dem Streitpatent zugrundeliegende Problem intensiv bemüht war und trotz der offenkundigen wirtschaftlichen Vorteile, die mit dem Einsatz des leicht und in großen Mengen verfügbaren 65 %igen Oleums verbunden sind, an der Erfindung gemäß Streitpatent vorbeigegangen ist. Dieser Sachverhalt ist ein deutliches Anzeichen für das Vorliegen erfinderischer Tätigkeit.

9. An diesem Ergebnis ändert sich auch nichts, wenn man, wie die Beschwerdeführerin vorgeschlagen hat, davon ausgeht daß auch gemäß (1) bereits das Problem gelöst worden ist, eine direkt weiterverarbeitbare PNTS unter Verringerung der Menge an Abfallschwefelsäure herzustellen.

Auch wenn nämlich insoweit das Verfahren gemäß Streitpatent lediglich eine Alternative zu dem Vorschlag gemäß (1) darstellen würde, so verbliebe als Aufgabe immer noch, ein bezüglich der Produktqualität vergleichbares, jedoch wirtschaftlicheres Verfahren anzugeben (siehe Streitpatent, Spalte 2, Zeilen 34-44). Auch die Lösung dieser Aufgabe mit den Maßnahmen gemäß Streitpatent, insbesondere der Einhaltung des "Umsetzungsgrads" von mindestens 90 % während der gesamten Reaktionsdauer, ergibt sich aus den dargelegten Gründen nicht in naheliegender Weise aus dem entgegengehaltenen Stande der Technik.

10. Die Ansprüche 2 bis 15 betreffen besondere Ausführungsformen des Verfahrens nach Anspruch 1. Ihre Patentierbarkeit wird daher von der Patentierbarkeit des Anspruchs 1 getragen.

Entscheidungsformel**Aus diesen Gründen wird entschieden:**

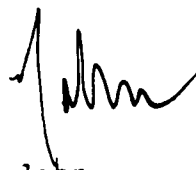
Die Beschwerde wird zurückgewiesen.

Der Geschäftsstellenbeamte:



M. Beer

Der Vorsitzende:



K. Jahn