

**Interner Verteilerschlüssel:**

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

**E N T S C H E I D U N G**  
vom 23. November 2001

**Beschwerde-Aktenzeichen:** T 0912/97 - 3.3.7

**Anmeldenummer:** 92117580.8

**Veröffentlichungsnummer:** 0544091

**IPC:** B01J 31/40

**Verfahrenssprache:** DE

**Bezeichnung der Erfindung:**

Verfahren zur Reaktivierung wasserlöslicher  
Hydroformylierungskatalysatoren

**Patentinhaber:**

Celanese Chemicals Europe GmbH

**Einsprechender:**

Union Carbide Corporation

**Stichwort:**

-

**Relevante Rechtsnormen:**

EPÜ Art. 54, 56

**Schlagwort:**

"Neuheit (ja)"

"Erfinderische Tätigkeit - Aufgabe und Lösung - keine  
naheliegende Lösung"

**Zitierte Entscheidungen:**

T 0606/89, T 0219/83

**Orientierungssatz:**



**Europäisches  
Patentamt**

**European  
Patent Office**

**Office européen  
des brevets**

Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

**Aktenzeichen:** T 0912/97 - 3.3.7

**E N T S C H E I D U N G**  
**der Technischen Beschwerdekammer 3.3.7**  
**vom 23. November 2001**

**Beschwerdeführer:** Union Carbide Corporation  
(Einsprechender) 39 Old Ridgebury Road  
Danbury, Connecticut 06817-0001 (US)

**Vertreter:** Barz, Peter, Dr.  
Patentanwalt  
Kaiserplatz 2  
D-80803 München (DE)

**Beschwerdegegner:** Celanese Chemicals Europe GmbH  
(Patentinhaber) Lurgiallee 14  
D-60439 Frankfurt am Main (DE)

**Vertreter:** -

**Angefochtene Entscheidung:** Zwischenentscheidung der Einspruchsabteilung  
des Europäischen Patentamts über die  
Aufrechterhaltung des europäischen Patents  
Nr. 0 544 091 in geändertem Umfang, zur Post  
gegeben am 24. Juni 1997.

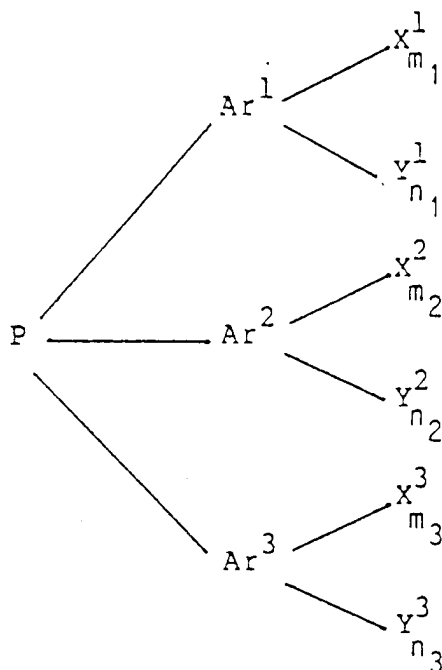
**Zusammensetzung der Kammer:**

**Vorsitzender:** R. E. Teschemacher  
**Mitglieder:** B. J. M. Struif  
B. L. ter Laan

## Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die Anmeldung vom 15. Oktober 1992 mit der Anmeldenummer 92 117 580.8 wurde mit Wirkung vom 8. März 1995 das europäische Patent 0 544 091 erteilt. Der erteilte Anspruch 1 lautete wie folgt:

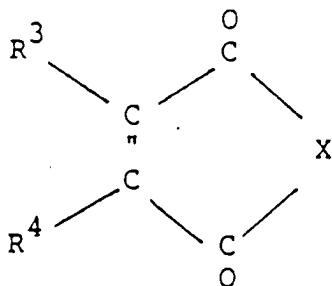
"Verfahren zum Regenerieren wasserlöslicher Hydroformylierungskatalysatorsysteme, die Rhodium und Verbindungen der allgemeinen Formel I



I

wobei Ar<sup>1</sup>, Ar<sup>2</sup>, Ar<sup>3</sup> jeweils eine Phenyl- oder Naphthylgruppe, Y<sup>1</sup>, Y<sup>2</sup>, Y<sup>3</sup> jeweils eine geradkettige oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 4 C-Atomen, eine geradkettige oder verzweigte Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen, ein Halogenatom, die OH-, CN-, NO<sub>2</sub> oder R<sup>1</sup>R<sup>2</sup>N-Gruppe, in der R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> für jeweils eine geradkettige oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 4

C-Atomen stehen, bedeuten,  $X^1$ ,  $X^2$  und  $X^3$  ein Carboxylat-( $\text{COO}^-$ ) und/oder ein Sulfonat-( $\text{SO}_3^-$ )Rest ist,  $m_1$ ,  $m_2$ ,  $m_3$  gleiche oder verschiedene ganze Zahlen von 0 bis 3 sind, wobei mindestens eine Zahl  $m_1$ ,  $m_2$ ,  $m_3$  gleich oder größer als 1 ist und  $n_1$ ,  $n_2$ ,  $n_3$  gleiche oder verschiedene ganze Zahlen von 0 bis 5 sind, komplexgebunden und gegebenenfalls im Überschuß enthalten, dadurch gekennzeichnet, daß man den wäßrigen Lösungen der Katalysatorsysteme zur Entfernung sulfonierter oder carboxylierter Alkyl-arylphosphane Maleinsäure, Fumarsäure oder olefinisch ungesättigte Verbindungen der allgemeinen Formel II



in der X für O, S, N- $R^5$  oder P- $R^5$  steht und  $R^3$ ,  $R^4$  und  $R^5$  gleich oder verschieden sind und Wasserstoff, einen Alkylrest oder Arylrest bedeuten, zusetzt."

Die Ansprüche 2 bis 8 betrafen Ausführungsformen des Verfahrens nach Anspruch 1.

II. Gegen die Erteilung wurde Einspruch eingelegt mit dem Antrag, das Patent aufgrund der Artikel 100 a) und b) EPÜ wegen mangelnder erfinderischer Tätigkeit sowie fehlender Ausführbarkeit zu widerrufen. Während der

mündlichen Verhandlung vor der Einspruchsabteilung am 23. April 1997 wurde aufgrund von D2 auch ein Neuheitseinwand erhoben. Zur Begründung stützte sich die Einsprechende u. a. auf folgenden Stand der Technik:

D1: US-A-4 283 304

D2: US-A-4 935 550

D3: DE-A-26 27 354.

III. Mit Entscheidung der Einspruchsabteilung vom 24. Juni 1997 wurde das Patent in geänderter Form aufrechterhalten. Der geänderte Anspruch 1 unterschied sich von Anspruch 1 der erteilten Fassung in folgender Weise:

- Ersatz des Ausdrucks "Hydroformylierungskatalysatorsysteme, die" durch "Katalysatorsysteme, die in einer Hydroformylierungsreaktion unter Verwendung wäßriger Katalysatorlösungen gebraucht wurden und";
- Ersatz des Ausdrucks "Entfernung" durch "Umsetzung";
- Ersatz des Ausdrucks "Alkyl-arylphosphane" durch "Alkyl-arylphosphine".

In den Ansprüchen 2 und 3 wurde der Ausdruck "Alkyl-arylphosphans" durch den Ausdruck "Alkyl-arylphosphins" ersetzt. Die erteilten Ansprüche 4 bis 8 verblieben unverändert.

- a) Die Einspruchsabteilung hielt die geänderte Anspruchsfassung nach Artikel 123 (2) und (3), 84 und

Regel 57a EPÜ für zulässig, die auch Einwendungen der Einsprechenden nach Artikel 83 EPÜ ausräumte.

- b) Neuheit sei gegeben, da im Konditionierungsschritt von D2 nicht die gebrauchte Katalysatorlösung selbst, sondern ein wässriger Extrakt von Umsetzungsprodukten des gebrauchten Katalysators behandelt werde. Ferner werde in D2 ein wasserunlösliches Katalysatorsystem regeneriert. Auch die anderen Dokumente erwähnten nicht alle Merkmale in der beanspruchten Kombination.
- c) D3 wurde als nächstliegender Stand der Technik angesehen, demgegenüber die Aufgabe bestand und gelöst wurde, wie eine bei einem Zweiphasen-Hydroformylierungsverfahren gebrauchte, teilweise deaktivierte Katalysatorlösung regeneriert werden könne, ohne daß das Hydroformylierungsverfahren unterbrochen werden müsse und wobei die Reaktionsprodukte der Regenerierungsbearbeitung in der Katalysatorlösung verbleiben könnten. Die erfinderische Tätigkeit wurde anerkannt, da der gesamte herangezogene Stand der Technik keine Anregung zur Lösung vermittele, Maleinsäure, Fumarsäure oder olefinisch ungesättigte Verbindungen der Formel II (nachstehend auch als Konditionierungsmittel abgekürzt) zu verwenden, um die aktivitätsmindernden Alkyl-arylphosphine selektiv zu unschädlichen Produkten umzusetzen und so das oben definierte Problem zu lösen.

IV. Am 26. August 1997 legte die Beschwerdeführerin (Einsprechende) unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr gegen die Entscheidung der Einspruchsabteilung Beschwerde ein, die am 16. Oktober 1997 begründet wurde.

Die Position der Beschwerdeführerin kann wie folgt zusammengefaßt werden:

- a) Das einzige für die Beurteilung der Neuheit relevante Merkmal des Anspruchs 1 sei die Zugabe eines Konditionierungsmittels zu einer wäßrigen Lösung, die Rhodium und Verbindungen der allgemeinen Formel I enthalte. Dieses Merkmal sei aber aus D2 bekannt.
  
- b) Anspruch 1 sei im Gegensatz zu D3 nicht auf ein Hydroformylierungsverfahren, sondern nur auf die Regenerierung eines Katalysatorsystems gerichtet, das möglicherweise im Verfahren nach D3 gebraucht worden sei. Anspruch 1 unterscheide sich von D3 durch die Zugabe eines Konditionierungsmittels. D1 dagegen löse ein Regenerierungsproblem durch Zugabe eines Konditionierungsmittels wie im Streitpatent.

Gehe man dennoch von D3 als nächstliegendem Stand der Technik und der in der angegriffenen Entscheidung angesprochenen Aufgabe aus, so werde diese Aufgabe nur im Fall einer kontinuierlichen Hydroformylierungsreaktion mit integrierter Regenerierungsstufe unter ganz spezifischen Bedingungen und daher nicht im gesamten beanspruchten Umfang gelöst.

Der beanspruchte Gegenstand sei durch eine Kombination von D3 mit D1 nahegelegt. D1 beschreibe das gleiche Problem wie das Streitpatent und löse das Problem mit den gleichen Mitteln durch Zugabe des beanspruchten Konditionierungsmittels. Der einzige Unterschied sei, daß das in D1 beschriebene Verfahren in der organischen Phase stattfinde. Wasserlösliche Katalysatorsysteme seien jedoch aus D3 bekannt. Da

sowohl in D1 als auch D3 durch Reaktion zwischen den Alkyl-arylphosphinen und den Konditionierungsmitteln wasserlösliche Produkte entstünden, liege eine Übertragung der Lehre gemäß D1 auf D3 nahe. Im Hinblick auf die Offenbarungen von D1 und D2 liege kein Vorurteil gegen eine solche Übertragung vor.

Schließlich könne in den Beispielen ein sehr hoher Prozentsatz des Gesamtverbrauchs an Phosphinen nicht der Reaktion mit dem Konditionierungsmittel zugeordnet werden, so daß die angebliche Reaktivitätsverbesserung nicht allein der beanspruchten Umsetzung zuzuschreiben sei.

Aus diesen Gründen sei der beanspruchte Gegenstand nicht erfinderisch.

V. Die Position der Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin) kann wie folgt zusammengefaßt werden:

- a) Der Anspruch 1 sei gegenüber D2 neu, da das beanspruchte Verfahren die Zugabe eines Konditionierungsmittels zu einer gebrauchten Lösung eines wäßrigen Hydroformylierungskatalysators lehre und hierbei auf die selektive Umsetzung von sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphinen abziele, während in D2 Rhodium aus einem gebrauchten, wasserunlöslichen Katalysatorsystem durch eine mehrstufige Extraktionsbehandlung wiedergewonnen werde. Nach dem Streitpatent würden somit die in der Hydroformylierungssynthese eingesetzten Katalysatorlösungen, die durch Alkyl-arylphosphine verunreinigt seien, unmittelbar regeneriert, was aus D2 nicht bekannt sei.



b) Ausgehend von D3 als nächstliegendem Stand der Technik sowie von der in der angegriffenen Entscheidung wiedergegebenen Aufgabe, sei das beanspruchte Regenerierungsverfahren durch D1 nicht nahegelegt, da dort die störenden Alkyl-arylphosphine in nicht komplexbildende Phosphorylide umgewandelt und mit Hilfe von Wasser aus dem Reaktionsmedium entfernt würden. Beim beanspruchten Verfahren verblieben die eigentlich unerwünschten Substanzen im Katalysatorsystem, wodurch unerwarteterweise die Leistung des regenerierten Katalysatorsystems verbessert werde.

In D2 würden lediglich sulfoniertes Triarylphosphin eingesetzt, jedoch kein sulfoniertes Alkyl-arylphosphin, wie im Streitpatent beansprucht.

Somit sei der beanspruchte Gegenstand erfinderisch.

- VI. Die Beschwerdeführerin beantragte die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und den Widerruf des Streitpatentes.
- VII. Die Beschwerdegegnerin beantragte, die Beschwerde zurückzuweisen.
- VIII. Die mündliche Verhandlung fand nach Regel 71 (2) EPÜ am 23. November 2001 vor der Kammer in Abwesenheit der Parteien statt, die wie schriftlich angekündigt nicht erschienen waren.

## **Entscheidungsgründe**

1. Die Beschwerde ist zulässig.
2. Die geänderten Ansprüche wurden in der angegriffenen Entscheidung nach Artikel 123 (2) und (3) EPÜ als zulässig angesehen. Hiergegen wurden keine Einwände erhoben und die Kammer sieht auch keinen Grund, einen gegenteiligen Standpunkt zu vertreten.

*Neuheit*

3. In den Ansprüchen 1, 5, 6 und 17 von D2 wird ein Verfahren zur Gewinnung von Rhodium aus nicht-polaren organischen Lösungen beschrieben, die einen organischen Lösungsmittel-löslichen Komplex von Rhodium mit einem organischen Lösungsmittel-löslichen Organophosphorliganden enthalten, beim dem in einer ersten Stufe diese Rhodiumkomplex-haltige organische Lösung, die etwa aus einer Hydroformylierungsreaktion stammen kann (Spalten 3 und 4 überbrückender Absatz), mit einer wäßrigen Lösung eines ionischen Organophosphinliganden behandelt und der gebildete Rhodiumkomplex in die wäßrige Phase überführt wird. Die wäßrige Lösung wird in einer zweiten Stufe mit einem Konditionierungsmittel versetzt, das einen Ylidvorläufer, wie etwa eine ungesättigte Verbindung umfaßt, wobei wenigstens 70 % des ionischen Phosphinliganden in eine Form umgewandelt werden, die keine Komplexe mehr mit Rhodium bildet (Spalte 18, Zeilen 26 bis 35, 43 bis 54). Anschließend wird die behandelte Lösung mit der organischen Lösung eines organischen Lösungsmittel-löslichen Phosphorliganden versetzt, wobei der Rhodiumkomplex in die organische Phase zurückgeführt wird.

In den Beispielen 14 bis 17 von D2 wird als ionischer

Phosphinligand ein Natriumsalz der Triphenylphosphinmonosulfonsäure (TPPMS-Na) verwendet, mit dem das Rhodium in die wäßrige Phase überführt wird. Diese wäßrige Lösung wird dann mit Maleinsäure als Ylidvorläufer behandelt und anschließend mit einer organischen Triphenylphosphinlösung zurückextrahiert.

- 3.1 Danach ist in D2 ein dreistufiges Verfahren vorgesehen, bei dem eine organische Hydroformylierungslösung, d. h. eine wasserunlösliche Katalysatorlösung behandelt wird, um Rhodium zurückzugewinnen. Demgegenüber wird gemäß dem lediglich einstufigen Verfahren nach dem Streitpatent ein Katalysatorsystem, das in einer Hydroformylierungsreaktion unter Verwendung wäßriger Katalysatoren gebraucht wurde, unmittelbar regeneriert. In D2 wird nicht die gebrauchte wäßrige Katalysatorlösung selbst behandelt, sondern ein wäßriger Extrakt von Umsetzungsprodukten der ersten Verfahrensstufe. Ferner werden in D2 ionische Phosphinliganden lediglich als wäßrige Extraktionsmittel verwendet, um die löslichen Rhodiumkomplexe von der organischen Lösung in die wäßrige Phase zu überführen. Die ionischen Phosphinliganden unterliegen somit auch keinem chemischen Abbau während der Hydroformylierung. Demgegenüber werden nach dem Streitpatent sulfonierte und carboxylierte Arylphosphinliganden bei der Hydroformylierungsreaktion teilweise zu sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphinen umgewandelt, so daß bei der Regenerierung mit einem Konditionierungsmittel sulfonierte oder carboxylierte Alkyl-aryl- und Triarylphosphine gemeinsam in der gebrauchten Katalysatorlösung vorliegen. Demgemäß handelt es sich bei der Lehre von D2 und dem Streitpatent um zwei völlig verschiedene Verfahren mit unterschiedlicher Zielsetzung, verschiedenen Verfahrensstufen und

Einsatzmaterialien.

- 3.2 Die Auffassung der Beschwerdeführerin, nach der das einzige für Neuheit und erfinderische Tätigkeit relevante Merkmal des Streitpatentes in der Zugabe eines Konditionierungsmittels zu einer wäßrigen Lösung, die Rhodium und Verbindungen der allgemeinen Formel I enthalten, zu sehen sei, hält einer näheren Überprüfung nicht stand:

Schon aus dem Wortlaut des geänderten Anspruchs 1 geht hervor, daß es bei dem beanspruchten Verfahren auf die Zugabe eines Konditionierungsmittels der Formel II "zur Umsetzung von sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphinen" ankommt. Das beanspruchte Verfahren beinhaltet damit nicht nur einen Zugabeschritt des Konditionierungsmittels, sondern auch dessen Umsetzung mit den Alkyl-arylphosphinen als wesentliches Merkmal. Die Bedeutung dieses Merkmals ist auch in der Beschreibung auf Seite 3, Zeile 57 bis Seite 5, Zeile 3 und in den Beispielen des Streitpatents ausführlich erläutert, so daß es bei der Beurteilung der Neuheit nicht einfach übergangen werden kann.

- 3.3 Darüber hinaus sind die ionischen Liganden nach D2 durch zwei unterschiedliche Strukturen mit zahlreichen organischen Resten sowie verschiedenen ionischen Gruppen gekennzeichnet (D2, Spalte 13, Zeile 50 bis Spalte 15, Zeile 42). Speziell erwähnt sind ionische Triarylphosphine und Bisdiarylphosphine, wobei sulfonierte und carboxylierte Triarylphosphine, insbesondere mono- und trisulfonierte Triphenylphosphine bevorzugt sind (Spalte 15, Zeilen 43 bis 56), die keine Alkylgruppen enthalten. In den Beispielen von D2 wird ausschließlich das Natriumsalz von Triphenylphosphinmonosulfonsäure

verwendet. Hieraus sind sulfonierte oder carboxylierte Alkyl-arylphosphine, die neben den Triarylphosphinen der Formel I als Bestandteile einer wäßrigen zu regenerierenden Katalysatorlösung vorliegen, nicht direkt und unmittelbar zu entnehmen.

- 3.4 Aus den vorstehend dargelegten Gründen stimmt daher das beanspruchte Verfahren nicht mit sämtlichen Merkmalen von D2 überein. Da auch die anderen Dokumente den Gegenstand des Streitpatents nicht vorbeschreiben, ist er nach Artikel 54 EPÜ als neu anzusehen.

#### *Nächstliegender Stand der Technik*

4. Die Beschwerdegegnerin, wie auch die Einspruchsabteilung, ist der Meinung, daß von D3 als nächstliegendem Stand der Technik auszugehen ist. Die Beschwerdeführerin weist demgegenüber darauf hin, daß Anspruch 1 im Gegensatz zu D3 nicht auf ein Hydroformylierungsverfahren, sondern nur auf die Regenerierung eines Katalysatorsystems gerichtet ist, während D1 dagegen ein Regenerierungsverfahren durch Zugabe eines Konditionierungsmittels wie das Streitpatent lehrt.
- 4.1 Das angegriffene Patent betrifft ein Verfahren zur Reaktivierung wasserlöslicher Hydroformylierungskatalysatoren. Bei diesem Verfahren sollen wäßrige, Rhodium und sulfonierte oder carboxylierte Phosphinverbindungen der Formel I enthaltende Katalysatorsysteme regeneriert werden, die in einer Hydroformylierungsreaktion unter Verwendung von Katalysatorlösungen gebraucht wurden. Aufgabe des Streitpatents war es, die bei der Hydroformylierung entstehenden, inaktivierend wirkenden Alkyl-arylphosphine

möglichst selektiv im Reaktionsgemisch unschädlich zu machen (Seite 3, Zeilen 5 und 6 in Verbindung mit Seite 4, Zeile 46 bis Seite 5, Zeile 2).

- 4.2 Aus dem Dokument D3 ist ein Verfahren zur Herstellung von Aldehyden durch Umsetzung von aliphatischen Olefinen mit Kohlenmonoxid und Wasserstoff in flüssiger Phase bekannt, in Gegenwart einer wäßrigen Lösung, die neben Rhodium auch sulfonierte Triarylphosphine enthält (Anspruch 1). Nach beendeter Reaktion ist eine leichte Abtrennung der Reaktionsprodukte vom Reaktionsmedium durch Absitzenlassen oder Extraktion möglich (Seite 14, erster Absatz).

D3 geht bei der Diskussion des Standes der Technik von der bekannten Hydroformylierung in flüssiger Phase mit homogenen und in organischer Lösung vorliegenden Katalysatorsystemen aus, wobei ein besonderer Nachteil in der aufwendigen Behandlung beruht, um die Reaktionsprodukte von der Katalysatorlösung abzutrennen, den Katalysator zurückzugewinnen und in die Reaktionszone zurückzuführen. Demgemäß stellt die Aufgabe von D3 darauf ab, die Nachteile der bekannten, in homogener Phase durchgeführten Hydroformylierungsverfahren im Hinblick auf die Rückgewinnung des Katalysators zu vermeiden (Seite 4 und 5 überbrückender Absatz). Nach der allgemeinen Lehre von D3 wird mit den wasserlöslichen Katalysatorsystemen eine leichte und einfache Abtrennung von den Reaktionsprodukten der Hydroformylierung erzielt, so daß die wäßrige Katalysatorschicht ohne Nachbehandlung im Kreislauf für eine weitere Hydroformylierungsreaktion eingesetzt werden kann. Die wäßrige Lösung läßt sich im Kreislauf zurückführen, ohne daß Verluste beim Katalysatorsystem auftreten, wobei auch keinerlei Aktivitätsverlust der

Katalysatorlösung beobachtet wird (Seite 14, erster Absatz; Seiten 4 und 5, überbrückender Absatz).

- 4.3 D1 betrifft ein Verfahren zur Entfernung von Triarylphosphinen und Alkyl-substituierten Phosphinen aus einer Rhodium-haltigen Zusammensetzung, die in einer Hydroformylierungsreaktion in organischer Phase verwendet wird, wobei im Verlauf der Hydroformylierungsreaktion ein Aktivitätsverlust eintritt, der auf die Bildung von Alkyldiarylphosphinen zurückzuführen ist (Spalte 1, Zeilen 11 bis 17; Spalte 6, Zeile 28 bis Spalte 7, Zeile 29). Aufgabe von D1 ist es daher, die unerwünschten Alkyl-arylphosphine selektiv aus dem Medium der Hydroformylierungsreaktion zu entfernen, ohne die günstigen Triarylphosphine und den Komplexkatalysator nachteilig zu beeinflussen (Spalte 8, Zeilen 49 bis 62).

Nach Anspruch 1 von D1 wird das einen Rhodiumkomplex enthaltende Medium mit einer wässrigen, olefinisch ungesättigten Verbindung, beispielweise Maleinsäure als Konditionierungsmittel umgesetzt, die Alkyl-arylphosphine selektiv in wasserlösliche Produkte, die keine Komplexe mehr mit dem Rhodium bilden, überführt. Nach Absetzen der beiden Phasen wird die wässrige Phase, die die löslich gemachten Reaktionsprodukte enthält, abgetrennt, wonach die nicht-wässrige Phase in den Kreislauf zurückgeführt werden kann (Spalte 22, Zeilen 4 bis 6). Nach diesem Verfahren kann die Hydroformylierungsgeschwindigkeit des behandelten Reaktionsmediums gegenüber einem unbehandelten Medium verbessert werden (Spalte 21, Zeilen 27 bis 35). In den Beispielen ist gezeigt, daß die Entfernung von Propyldiphenylphosphin (Alkyl-arylphosphin) aus dem Reaktionsmedium die Katalysatoraktivität erhöht (Beispiel 5, Tabelle IV).

- 4.4 Nach den Angaben im Streitpatent bilden sich bei den bekannten Katalysatoren sulfonierte oder carboxylierte Alkyl-arylphosphine, die hemmend auf die Hydroformylierungsreaktion einwirken. Diese gemischten, aliphatisch-aromatischen Phosphine bilden sich im Laufe der Umsetzung der Olefine mit Kohlenmonoxid und Wasserstoff aus dem sulfonierten Triarylphosphin durch Austausch von Arylresten gegen Alkylgruppen, wobei die Alkylgruppen sich von dem Olefin ableiten, das hydroformyliert wird. So entsteht z. B. bei der Reaktion von Propylen in Gegenwart von sulfoniertem Triphenylphosphin disulfoniertes n-Propyl-diphenylphosphin. Die gemischten, aliphatisch-aromatischen Phosphine ergeben mit Rhodium katalytisch inaktive Komplexverbindungen mit der Folge, daß Reaktionsgeschwindigkeit und Katalysatoraktivität deutlich abnehmen (Streitpatent, Seite 2, Zeile 54 bis Seite 3, Zeile 4). Demgemäß stellt die Aufgabe des Streitpatentes darauf ab, die inaktivierend wirkenden Alkyl-arylphosphine möglichst selektiv aus dem Reaktionsgemisch zu entfernen, d. h. unschädlich zu machen (Seite 3, Zeilen 5 und 6, Seite 4, Zeilen 46 bis 47).
- 4.5 Obwohl sich D1 auf eine nicht-wässrige Katalysatorlösung und eine einphasige Hydroformylierungsreaktion bezieht, ist nur D1 auf ein Verfahren zum Regenerieren von Hydroformylierungskatalysatoren gerichtet, bei dem eine Umsetzung mit einem Konditionierungsmittel erfolgt, um ein inaktivierend wirkendes Phosphinprodukt selektiv umzusetzen. Dagegen werden nach D3 zwar gleiche wasserlösliche Katalysatoren wie nach dem Streitpatent für die Hydroformylierung eingesetzt, aber ein Regenerierungsverfahren wird überhaupt nicht in Betracht gezogen.



- 4.6 Aus der vorstehenden Analyse wird deutlich, daß D1 und D3 zwar eine Reihe von Merkmalen mit dem beanspruchten Verfahren gemeinsam haben, daß jedoch nur D1 ein Regenerierungsverfahren betrifft, das in seinen technischen Wirkungen mit denjenigen des Streitpatentes und seiner Aufgabenstellung vergleichbar ist. Da es bei der Wahl des nächstliegenden Standes der Technik im allgemeinen darauf an kommt, daß seine Lösung auf den gleichen Zweck bzw. dieselbe Wirkung wie die Erfindung gerichtet ist, wobei die strukturellen und funktionellen Unterschiede zum beanspruchten Gegenstand möglichst klein sind (T 606/89 vom 18. September 1990, Begründung Punkt 2., zitiert in Rechtsprechung der Beschwerdekammern des EPA, 3. Auflage 1998, I.D.3.1), wird D1 daher als nächstliegend angesehen.

*Aufgabe - Lösung*

5. Bei dem Regenerierungsverfahren von D1, bei dem Hydroformylierungslösungen in homogener Phase als Ausgangsmaterialien eingesetzt werden, ist die Wiedergewinnung der im Reaktionsprodukt gelösten Katalysatoren schwierig, da es erforderlich ist, die Reaktionsprodukte von der Katalysatorlösung und darüber hinaus den Katalysator von den störenden Umwandlungsprodukten der Hydroformylierungsreaktion abzutrennen (Patentschrift, Seite 4, Zeilen 1 bis 12).

Die Aufgabe des Streitpatentes besteht also gegenüber D1 darin, ein Verfahren bereitzustellen, mit dem die teilweise deaktivierte Katalysatorlösung in vereinfachter Weise regeneriert werden kann, wobei die nachteiligen Reaktionsprodukte der Hydroformylierung (Alkyl-arylphosphine) selektiv unschädlich gemacht werden.

- 5.1 Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß in dem zu regenerierenden Hydroformylierungsmedium wasserlösliche Hydroformylierungskatalysatoren verwendet werden, die als Komplexbildner sulfonierte oder carboxylierte Phosphine enthalten, wobei die während der Hydroformylierung gebildeten carboxylierten oder sulfonierten Alkyl-arylphosphine mit einem Konditionierungsmittel der Formel II umgesetzt werden, wie im Anspruch 1 definiert.
- 5.2 Die desaktivierende Wirkung von sulfonierten Alkyl-arylphosphinen ist am Beispiel von Dinatrium-propyldi(m-sulfophenyl)phosphin (PDSPP), das sich bei der Hydroformylierung von Propylen in Gegenwart von Tri(m-sulfophenyl)phosphin bildet (Patentschrift, Seite 4, Zeilen 42 bis 45) in Tabelle 1 erläutert, wonach eine Zugabe von 1.73 Mol-% bzw 7.4 Mol-% PDSPP zu einer Herabsetzung der relativen Aktivität von 100 (ohne Zugabe) auf 92 und schließlich auf 46 führt. Somit ist belegt, daß die Anwesenheit von sulfonierten Alkyl-arylphosphinen zu einer Verringerung der Aktivität führt. Wie die Beispiele 4, 5 und 12 (Tabellen 2 und 4) des Streitpatentes demgegenüber zeigen, wird durch Zugabe von 0.4 Gew.-% (Beispiel 5) bzw. 0.1 Gew.-% Maleinsäure (Beispiel 12) zu einer gealterten zweiphasigen Hydroformylierungslösung die relative Aktivität von 41.5 (Beispiel 4, als Vergleich) auf 77.5 (Beispiel 5) bzw. 107 (Beispiel 12) erhöht, während das Umsetzungsprodukt in der Katalysatorlösung verbleibt. Gemäß Tabelle 3 erreicht der selektive Abbau der unerwünschten Produkte bei einer Zugabemenge von 0.1 Gew.-% an Maleinsäure ein Optimum. Ferner geht aus Beispiel 13 (Tabelle 4) hervor, daß nach Behandlung einer gealterten Hydroformylierungslösung mit der optimalen Menge Maleinsäure und Zugabe von frischer

Katalysatorlösung die relative Aktivität sogar auf 139 steigt und damit die relative Aktivität einer frischen Katalysatorlösung (100) deutlich übertrifft.

5.3 Die Auffassung der Beschwerdeführerin, die Aktivitätssteigerung hänge nicht ursächlich mit der Umsetzung von inaktivem Alkyl-arylphosphin zusammen, da in Tabelle 3 der Gesamtverbrauch an Phosphinen höher sei, als er aufgrund der zugegebenen molaren Maleinsäuremenge sein dürfte, ist nicht überzeugend, wie sich aus folgendem ergibt:

5.3.1 Selbst wenn man mit der Beschwerdeführerin davon ausgeht, daß der Gesamtverbrauch an Phosphinen höher ist als die zugegebene molare Maleinsäureanhydridmenge (vgl. Streitpatent, Tabelle 3), so sagt dieser Befund nichts darüber aus, daß die Aktivitätssteigerung nicht ursächlich mit der Umsetzung von inaktivem Alkyl-arylphosphin zusammenhängt, da die Alkyl-arylphosphine beim Gesamtverbrauch der Phosphine nicht differenziert in Erscheinung treten.

Hierbei ist zu beachten, daß es sich bei der gebrauchten Katalysatorlösung um ein komplexes Reaktionssystem handelt, das neben Rhodium und Phosphinen auch reaktionsfähige Aldehyde und weitere Neben- und Folgeprodukte der Hydroformylierung enthält, die bei der Reaktion mit Maleinsäureanhydrid möglicherweise ebenfalls eine Rolle spielen.

5.3.2 Aussagefähiger als der Gesamtverbrauch an Phosphinen ist hingegen der Verbrauch an "PDSPP allein", da dieser einen unmittelbaren Rückschluß auf den Verbrauch an Alkyl-arylphosphinen zuläßt. Aus Tabelle 3 des Streitpatentes ist zu entnehmen, daß im Vergleich zu

einem unbehandelten Katalysatorsystem (Beispiel 7) mit steigender Zugabe von 0.05 bis 0.4 Gew.-% Maleinsäure (Beispiele 8 bis 10) neben dem Gesamtverbrauch an Phosphinen auch gleichzeitig der Verbrauch von "PDSPP alleine" zunimmt. Obwohl Beispiel 11 bei Zusatz von 0.5 Gew.-% (17.5 mmol) Maleinsäure keinen weiter zunehmenden Verbrauch an "PDSPP alleine" wie die Beispiele 8 bis 10 zeigt, ist für dieses Beispiel ein um 2.8 mmol höherer Phosphinverbrauch im Vergleich zum unbehandelten Katalysatorsystem festzustellen und damit der erwünschte technische Effekt belegt.

Geht man von einer molaren Umsetzung zwischen Alkylarylphosphinen und der olefinisch ungesättigten Verbindung von 1:1 aus (Seite 5, Zeilen 20 bis 23), so steht in den Beispielen 8 bis 10 die molare Maleinsäureanhydridmenge mit etwa 1.75 mmol (0.05 Gew.-%), 3.5 mmol (0.1 Gew.-%), und 14.0 mmol (0.4 Gew.-%) in einer durchaus ursächlichen Relation zum Verbrauch an PDSPP mit 1.0, 3.4 und 3.6 mmol, wobei selbst das vorstehend erwähnte Beispiel 11 dieser Relation nicht widerspricht.

Da die Wirkung und der technische Effekt aufgrund der Umsetzung der Verbindungen der Formel II mit den Alkylarylphosphinen ausreichend dargelegt ist, kann es dahingestellt bleiben, ob auch belegt wäre, daß die Vorteile "alleine" der beanspruchten Umsetzung zuzuschreiben wären.

- 5.3.3 Im übrigen hat die Beschwerdeführerin keine eigenen Untersuchungsergebnisse für ihre Behauptungen vorgebracht, daß die Zugabe von Maleinsäure für den erreichten Effekt nicht ursächlich oder nicht alleine der beanspruchten Umsetzung zuzuschreiben sei. Der Beweislast für ihre Behauptung hat sich die

Beschwerdeführerin daher nicht entledigt (T 219/83, ABl. EPA, 1986, 211).

- 5.3.4 Aus den vorstehend dargelegten Gründen ist zur Überzeugung der Kammer daher der Effekt der Zugabe von Maleinsäure für die Umsetzung der inaktiven Phosphine ausreichend dargelegt.
- 5.4 Auch die Auffassung der Beschwerdeführerin, die in der angegriffenen Entscheidung zitierte Aufgabe werde nicht im gesamten beanspruchten Umfang gelöst, hält einer näheren Überprüfung nicht stand.
- 5.4.1 Wie unter Punkt 4.6 dargelegt, ist D3 nicht als nächstliegender Stand der Technik anzusehen und die in der angegriffenen Entscheidung angesprochene Aufgabe (siehe oben Punkt III. c)) stellt nicht auf die technischen Wirkungen des Streitpatents und seiner dort gestellten Aufgabe ab. Wie unter Punkt 5 erläutert, steht als Aufgabe das selektive Unschädlichmachen der inaktivierend wirkenden Alkyl-arylphosphine im Vordergrund. Wird von einer solchen Aufgabe ausgegangen, so besteht die Lösung darin, als Komplexbildner sulfonierte oder carboxylierte Phosphine einzusetzen und die während der Hydroformylierung gebildeten carboxylierten oder sulfonierten Alkyl-arylphosphine mit einem Konditionierungsmittel umzusetzen.
- 5.4.2 Demgegenüber hat die Beschwerdeführerin behauptet, die Vorteile träten lediglich bei einem kontinuierlichen Hydroformylierungsverfahren mit integrierter Regenerierstufe auf. Hierbei wird aber übersehen, daß es sich dabei um eine bevorzugte Ausgestaltung des Streitpatents handelt, die erst bei der Verwendung des regenerierten Produktes in der nachfolgenden

Hydroformylierung auftritt (Patentschrift, Seite 4, Zeilen 1 bis 12). Die Vorteile der Regenerierung mit wiederhergestellter katalytischer Aktivität sind dagegen bereits schon dann eingetreten, wenn das Hydroformylierungsmedium anspruchsgemäß behandelt worden ist, d. h. wenn die Alkyl-arylphosphine mit dem speziellen Konditionierungsmittel selektiv unschädlich gemacht worden sind und zwar unabhängig davon, ob das regenerierte Produkt nun in einem Hydroformylierungsverfahren kontinuierlich oder diskontinuierlich weiterverarbeitet wird. Demgemäß ist der vorstehende Einwand unbegründet.

- 5.5 Aus den vorstehenden Gründen sind die Zweifel der Beschwerdeführerin daran, daß die beanspruchten Maßnahmen eine effektive Lösung des oben definierten technischen Problems im gesamten beanspruchten Umfang liefern, nicht hinreichend belegt.

#### *Erfinderische Tätigkeit*

6. Es bleibt die Frage zu untersuchen, ob der Fachmann ausgehend von einem Regenerierungsverfahren nach D1 und mit der Aufgabe konfrontiert, die teilweise deaktivierte Katalysatorlösung in vereinfachter Weise zu regenerieren, um die nachteiligen Reaktionsprodukte der Regenerierungsbehandlung in der Katalysatorlösung möglichst selektiv unschädlich zu machen, aufgrund der vorhandenen Dokumente in naheliegender Weise zu dem beanspruchten Regenerierungsverfahren gekommen wäre.
- 6.1 Nach der Lehre von D1 ist es wesentlich, in organischen Lösungsmitteln lösliche Katalysatorsysteme zu behandeln, wobei ein aufwendiger Abtrennungsschritt erforderlich ist, um die störenden Alkyl-arylphosphine aus dem

Katalysatorsystem physikalisch abzutrennen. Demgemäß liefert D1 selbst keinen Hinweis auf die beanspruchte Lehre, wasserlösliche Katalysatorsysteme, die sulfonierte oder carboxylierte Alkyl-arylphosphine enthalten, zu behandeln.

- 6.2 Keines der anderen oben zitierten Dokumente zieht eine Kombination von bestimmten Konditionierungsmitteln zur Entfernung von sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphinen bei einem Regenerierverfahren zur Wiederherstellung der katalytischen Aktivität einer verbrauchten wäßrigen Katalysatorlösung in Erwägung, so daß auch eine Kombination eines oder mehrerer dieser Dokumente mit D1 nicht in naheliegender Weise zum beanspruchten Gegenstand führt.

Insbesondere wird im Vergleich zu den unsubstituierten Triarylphosphinen von D1 durch die sulfonierten Phosphingruppen gemäß D3 eine massive chemische Veränderung im Molekül herbeigeführt, die nicht nur seine Löslichkeit, sondern auch seine Stabilität und Reaktivität verändern dürfte, so daß nach D3 nicht vorhersehbar ist, wie sich die wasserlöslichen Katalysatorsysteme bei der Hydroformylierungsreaktion einerseits und gegenüber dem Konditionierungsmittel andererseits verhalten werden. Tatsächlich wird in D3 kein Regenerierverfahren durchgeführt, da kein Aktivitätsverlust beobachtet wurde. Noch weniger konnte erwartet werden, daß durch die beanspruchte Umsetzung der Alkyl-arylphosphine eine physikalische Abtrennung der Umwandlungsprodukte von der regenerierten Katalysatorlösung entbehrlich würde. Somit gab es für den Fachmann auch keine Veranlassung, die Lehre von D1 durch diejenige von D3 zu modifizieren.

Da D2 ein Verfahren zur Gewinnung von Rhodium aus nicht-polaren organischen Lösungen und darin löslichen Organophosphorliganden betrifft, bei dem keine sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphine aus den Triarylphosphinen durch eine Hydroformylierungsreaktion gebildet werden können, liegt im Vergleich zum Streitpatent ein anderes Problem und eine verschiedenartige Lösung vor. Daher besteht nach der Lehre von D2 für den Fachmann auch keine Anregung das Verfahren von D1 in Richtung auf die beanspruchte Lehre abzuändern.

7. Selbst wenn man, wie die Beschwerdegegnerin und die Einspruchsabteilung, von D3 als nächstliegendem Dokument ausgeht, kommt man nicht zu einem anderen Ergebnis.

7.1 In D3 ist weder das Problem von störenden Katalysatorbestandteilen noch ein Regenerierungsverfahren zu deren Entfernung vorgesehen. Deswegen ist eine allgemeinere Aufgabendefinition gerechtfertigt, die etwa dahin formuliert werden kann, ein Regenerierungsverfahren für ein Katalysatorsystem zu finden, das in einer Hydroformylierungsreaktion unter Verwendung wäßriger Katalysatorlösungen gebraucht wurde und sulfonierte oder carboxylierte Triarylphosphinliganden enthält.

7.2 Da in D3 weder ein Regenerierungsverfahren für eine wäßrige Katalysatorlösung noch eine Behandlung mit einer olefinisch ungesättigten Verbindung in Betracht gezogen wird, kann D3 allein schon aus diesem Grunde keine Anregung in Richtung auf die beanspruchte Lösung im jetzigen Anspruch 1 liefern.

7.3 Eine Kombination von D1 mit D3 wäre schon deshalb nicht naheliegend, da es viele andere Möglichkeiten neben dem beanspruchten Weg gibt, um ein Regenerierungsverfahren



auszugestalten, mit dem die Katalysatorleistung wiederhergestellt werden kann. Zwar wird in D1 das gleiche Konditionierungsmittel wie beansprucht zur Beseitigung störender Alkyl-arylphosphine verwendet und es entsteht hierbei auch ein wasserlösliches Produkt, jedoch läßt sich hieraus weder ableiten noch vorhersehen, daß sich dieses Konditionierungsmittel gegenüber wasserlöslichen sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphinen weitgehend selektiv verhalten wird, da deren chemische Struktur gegenüber in organischen Lösungsmitteln löslichen Phosphinen erheblich verändert ist (siehe Punkt 6.2). Daher erhält der Fachmann auch keine Anregung, das für wasserunlösliche Phosphinkomplexe verwendete Konditionierungsmittel von D1 auf wasserlösliche Phosphinkomplexe von D3 zu übertragen. Noch weniger liegt es nach D1 auf der Hand, statt der komplizierten Abtrennung der umgesetzten, störenden Alkyl-arylphosphine die sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphine lediglich in unschädliche Reaktionsprodukte umzuwandeln, so daß sie vorteilhafterweise im Katalysatorsystem verbleiben können.

7.4 Das Argument der Beschwerdeführerin, daß eine Kombination von D1 mit D3 naheliege, da nach D2 ebenfalls sulfonierte Phosphinverbindungen mit einem wäßrigen Konditionierungsmittel behandelt würden und somit die gleichen Reaktionsverhältnisse vorlägen, wie im Streitpatent, ist nicht überzeugend.

7.4.1 In D2 steht die Rückgewinnung von Rhodium aus der organischen Phase im Vordergrund, nicht aber eine Regenerierung einer wäßrigen Katalysatorphase, bei der ein selektives Unschädlichmachen von störenden sulfonierten oder carboxylierten Alkyl-arylphosphinen

angestrebt ist. Ferner finden sich keine Hinweise darauf, sulfonierte oder carboxylierte Alkylarylphosphine in Anwesenheit von entsprechenden Triarylphosphinen mit ungesättigten Verbindungen möglichst selektiv umzusetzen. Vielmehr werden in D2 lediglich sulfonierte Triarylphosphine als Extraktionsmittel eingesetzt, die aber nach dem Streitpatent katalytisch wirksam sind und gerade deshalb nur in untergeordnetem Maße entfernt werden sollen. Darüber hinaus sind in D2 als Konditionierungsmittel neben ungesättigten Verbindungen (Ylidvorläufern) auch andere gleichwertige Mittel genannt, nämlich starke Säuren sowie Alkylierungs- oder Oxidationsmittel (D2, Anspruch 5), so daß es für den Fachmann auch keine Veranlassung gibt, gerade die beanspruchten ungesättigten Verbindungen der Formel II bei einem Regenerierungsverfahren zur möglichst selektiven Umsetzung von sulfonierten oder carboxylierten Alkylarylphosphinen zu verwenden. Demgemäß liegt auch in Kenntnis von D2 eine Kombination von D1 mit D3 nicht nahe.

- 7.4.2 Daraus ergibt sich, daß, auch ausgehend von D3, die Lösung des technischen Problems sich nicht in naheliegender Weise aus dem Stand der Technik ableiten läßt.
8. Aus den obengenannten Gründen kommt die Kammer zum Schluß, daß der Gegenstand von Anspruch 1, und aus den gleichen Gründen derjenige der abhängigen Ansprüche 2 bis 8, auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 56 EPÜ beruht.

### **Entscheidungsformel**

**Aus diesen Gründen wird entschieden:**

Die Beschwerde wird zurückgewiesen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

C. Eickhoff

R. Teschemacher