

BUNDESPATENTGERICHT

15 W (pat) 16/98

(Aktenzeichen)

Verkündet am
21. Februar 2000

...

BESCHLUSS

In der Beschwerdesache

betreffend das Patent 43 07 727

...

hat der 15. Senat (Technischer Beschwerdesenat) des Bundespatentgerichts auf die mündliche Verhandlung vom 21. Februar 2000 unter Mitwirkung des Vorsitzenden Richters Dr. Kahr, der Richter Dr. Deiß, Dr. Jordan und der Richterin Schroeter

beschlossen:

Der angefochtene Beschluß wird aufgehoben.

Das Patent wird beschränkt aufrechterhalten mit folgenden
Unterlagen:

Patentansprüche 1 bis 11, Beschreibung Spalten 1 bis 5 und
1 Blatt Zeichnungen mit Figuren 1 und 2, jeweils überreicht in
der mündlichen Verhandlung.

Gründe

I

Auf die am 11. März 1993 eingereichte Patentanmeldung hat das Deutsche Patentamt das Patent 43 07 727 mit der Bezeichnung

"Elektrolytfolie für planare Hochtemperaturbrennstoffzellen
und Verfahren zu ihrer Herstellung"

erteilt.

Nach Prüfung eines dagegen eingelegten Einspruchs hat die Patentabteilung 45 des Deutschen Patentamts das Patent mit Beschluß vom 19. Dezember 1997 widerrufen. Dem Beschluß lagen die Patentansprüche 1 bis 11 vom 12. September 1995 zugrunde. Die Patentansprüche 1, 5 und 11 lauteten:

"1. Elektrolytfolie für eine planare Hochtemperaturbrennstoffzelle, umfassend einen keramischen Mehrschichtaufbau mit

- einer mechanisch stabilen, frei tragenden Schicht (1) eines keramischen Materials, dessen Ionenleitfähigkeit größer ist als die von Yttrium-stabilisiertem Zirkoniumoxid, und
- einer relativ dazu wesentlich dünneren Elektrolytschicht (2) aus Yttrium-stabilisiertem Zirkoniumoxid
- bei der das Material der mechanisch stabilen Schicht (1) ausgewählt ist aus mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid, teilstabilisiertem Zirkoniumoxid und Anodencermet.

5. Verfahren zum Herstellen einer Elektrolytfolie nach einem der Ansprüche 1 bis 4 für eine planare Hochtemperaturbrennstoffzelle durch Beschichten einer mechanisch stabilen Keramikfolie (1) hoher Ionenleitfähigkeit mit einer relativ dazu dünneren, Yttrium- und Zirkoniumverbindungen enthaltenden Schicht, wobei diese Schicht in Yttrium-stabilisiertes Zirkoniumoxid (2) durch Sintern überführt wird.

11. Verwendung der Elektrolytfolie (3) nach einem der Ansprüche 1 bis 4 in einer planaren Hochtemperaturbrennstoffzelle bei einer Betriebstemperatur von 700 bis 850°C."

Der Widerruf wurde im wesentlichen damit begründet, daß die Entwicklung des Verfahrens gemäß Patentanspruch 5 bei Kenntnis von

(5) Fuel Cell, Program and Abstracts of the Fuel Cell Seminar 1992, 29. 11. bis 2. 12. 1992, Tuscon, Arizona, S 515 bis 518

auf keiner erfinderischen Tätigkeit beruhe. Da über die Anmeldung nur als Ganzes entschieden werden könne, müßten mit ihm auch die Ansprüche 1 bis 4 und 6 bis 11 fallen.

Als zum Stand der Technik gehörig waren im Verlauf des Prüfungs- und Einspruchsverfahrens noch genannt worden:

- (1) WO 92/12 106,
- (2) Proceedings of the Second International Symposium on "Solid Oxide Fuel Cells", Athen, Griechenland, 2. 7. bis 5. 7. 1991, S 377 bis 382 und 387 bis 393,
- (3) DE 35 43 818 C2,
- (4) T. Kudo u. a. in Solid State Ionics, Verlag VCH, Weinheim, 1990, S 67 bis 73,
- (6) G. Yi u. a. in Ceramic Bulletin Vol 70, Nr 7, 1991, S 1173 bis 1179,
- (7) DE 39 22 673 A1,
- (8) US 44 76 198.

Gegen diesen Beschluß hat die Patentinhaberin Beschwerde eingelegt und in der mündlichen Verhandlung am 21. Februar 2000 neue Patentansprüche 1 bis 11 eingereicht. Diese Patentansprüche haben folgenden Wortlaut:

"1. Elektrolytfolie für eine planare Hochtemperaturbrennstoffzelle, bestehend aus einem keramischen Mehrschichtaufbau aus

- einer mechanisch stabilen, frei tragenden Schicht (1) eines keramischen Materials, dessen Ionenleitfähigkeit größer ist als die von Yttrium-stabilisiertem Zirkoniumoxid, und
- einer relativ dazu wesentlich dünneren Elektrolytschicht (2) aus Yttrium-stabilisiertem Zirkoniumoxid,
- bei dem die mechanisch stabile Schicht (1) aus mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid und teilstabilisiertem Zirkoniumoxid ausgewählt ist.

2. Elektrolytfolie nach Anspruch 1, bei dem die Elektrolytschicht (2) aus Yttrium-stabilisiertem Zirkoniumoxid eine Dicke von 15 μm und weniger aufweist.
3. Elektrolytfolie nach einem der Ansprüche 1 oder 2, bei der die mechanisch stabile Schicht (1) aus mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid eine Dicke von 100 bis 200 μm aufweist.
4. Elektrolytfolie nach einem der Ansprüche 1 oder 2, bei der die mechanisch stabile Schicht (1) aus teilstabilisiertem Zirkoniumoxid eine Dicke von 40 bis 100 μm aufweist.
5. Verfahren zum Herstellen einer Elektrolytfolie nach einem der Ansprüche 1 bis 4 für eine planare Hochtemperaturbrennstoffzelle durch Beschichten der mechanisch stabilen Keramikfolie (1) hoher Ionenleitfähigkeit mit einer relativ dazu dünneren, Yttrium- und Zirkoniumverbindungen enthaltenden Schicht, wobei diese Schicht in Yttrium-stabilisiertes Zirkoniumoxid (2) durch Sintern überführt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 5, bei dem die mechanisch stabile Keramikfolie (1) mit einem Yttrium und Zirkonium enthaltenden Sol beschichtet wird und dieses vor dem Sintern getrocknet und entkohlt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 6, bei dem das Beschichten mittels Aufsprühen oder Spincoaten durchgeführt wird.

8. Verfahren nach Anspruch 6 oder 7, bei dem die Verfahrensschritte Aufbringen und Sintern, bis die gasdichte Yttrium-stabilisierte Zirkoniumoxidschicht (2) entstanden ist, mehrfach wiederholt werden.

9. Verfahren nach Anspruch 5, bei dem die mechanisch stabile Keramikfolie (1) eine Grünfolie ist, die Beschichtung durch Verpressen mit einer Yttrium- und Zirkonium-Verbindungen umfassenden Grünfolie erfolgt und bei dem beide Folien gemeinsam gesintert werden, wobei letztgenannte Grünfolie in Yttrium-stabilisiertes Zirkoniumoxid überführt wird.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 5 bis 9, bei dem das Sintern bei einer Temperatur von 1300 bis 1500°C durchgeführt wird.

11. Verwendung der Elektrolytfolie (3) nach einem der Ansprüche 1 bis 4 in einer planaren Hochtemperaturbrennstoffzelle bei einer Betriebstemperatur von 700 bis 850°C."

Zur Begründung der Beschwerde hat die Patentinhaberin im wesentlichen vorge-
tragen, daß die nunmehr beanspruchte Elektrolytfolie, das Verfahren zu ihrer Her-
stellung und ihre Verwendung gegenüber den genannten Druckschriften neu und
auch erfinderisch seien.

Die Patentinhaberin beantragt,

den angefochtenen Beschluß aufzuheben und das Patent beschränkt aufrechtzuerhalten auf der Grundlage der Patentansprüche 1 bis 11, Beschreibung Spalten 1 bis 5 und ein Blatt Zeichnungen mit Figuren 1 und 2, jeweils überreicht in der mündlichen Verhandlung.

Die Einsprechende hat zum Vorbringen der Patentinhaberin keine Stellungnahme abgegeben und ist zur mündlichen Verhandlung - wie angekündigt - nicht erschienen.

Wegen weiterer Einzelheiten wird auf den Akteninhalt verwiesen.

II

Die Beschwerde der Patentinhaberin ist frist- und formgerecht eingelegt worden und zulässig (PatG § 73). Sie ist unter Berücksichtigung des nunmehr geltenden Patentbegehrens in der Sache auch begründet.

1. Bezüglich einer ausreichenden Offenbarung der Gegenstände der Patentansprüche 1 bis 11 bestehen keine Bedenken, da deren Merkmale sowohl aus den ursprünglichen als auch erteilten Unterlagen herleitbar sind. Die Merkmale des Patentanspruchs 1 sind aus den ursprünglichen und erteilten Ansprüchen 1 und 3 herleitbar. Die Patentansprüche 2 bis 11 entsprechen den ursprünglichen Ansprüchen 2 und 4 bis 12.

2. Die Neuheit der beanspruchten Elektrolytfolie wie auch des Herstellungsverfahrens und ihrer Verwendung wird von der Einsprechenden nicht mehr bestritten und ist auch anzuerkennen, da in keiner der entgegengehaltenen Druckschriften

eine Elektrolytfolie und ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung mit allen Merkmalen der Patentansprüche 1, 5 und 11 beschrieben sind.

Aus (1) WO 92/12 106 ist ein Festelektrolyt für eine Hochtemperaturbrennstoffzelle mit einem Dreischichtenaufbau beschrieben, bei dem die Außenschichten überwiegend aus ZrO_2 bzw Bi_2O_3 bestehen und die Mittelschicht einen ZrO_2 - und Bi_2O_3 -Gehalt hat, der zwischen dem der Außenschichten liegt (vgl (1), Anspruch 1 und Fig 2 mit Figurenbeschreibung). Ein Zweischichtenaufbau, bei dem die frei tragende Schicht aus mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid oder aus teilstabilisiertem Zirkoniumoxid besteht, ist dieser Druckschrift nicht zu entnehmen. (2) "Solid Oxid Fuel Cells" (aaO) betrifft die Ionenleitfähigkeit von mit Yttrium stabilisiertem Zirkoniumoxid. Dort wird zwar darauf hingewiesen, daß teilstabilisiertes Zirkoniumoxid unter anderem wegen seiner guten mechanischen Eigenschaften für Brennstoffzellen besser geeignet sei als vollstabilisiertes Zirkoniumoxid. Ein Mehrschichtenaufbau eines entsprechenden Elektrolyten wird dort jedoch nicht beschrieben. Die (3) DE 35 43 818 C2 betrifft einen Gassensor mit einem Festelektrolyten, der aus tetragonalem Zirkoniumdioxid und 2 bis 3 Mol.% Yttriumoxid besteht. Auch dort findet sich keine Beschreibung eines Mehrschichtenaufbaus eines Elektrolyten. In (4) Solid State Ionics (aaO) befaßt sich ein Kapitel mit Festelektrolyten. Dort wird zwar unter anderem auf mit Gadolinium modifiziertes Ceroxid hingewiesen (Tab 6.1). Dessen Verwendung in einem mehrschichtigen Festelektrolyten ist dieser Druckschrift jedoch nicht zu entnehmen. In (5) Fuel Cell (aaO) wird die Herstellung dünner Elektrolytschichten für die Anwendung in Hochtemperaturbrennstoffzellen beschrieben, wobei dünne mit Yttrium stabilisierte Zirkoniumoxidfilme auf dichte und poröse Substrate aufgebracht werden (vgl (5), Überschrift und S 515, le beiden Absätze). Als Substrate werden bei diesem aus (5) bekannten Verfahren Kathodenmaterial verwendet im Gegensatz zur patentgemäßen Elektrolytfolie, bei der die frei tragende Keramikschrift Teil des Elektrolyten ist. Daher unterscheiden sich auch die frei tragenden Keramikschriften des Standes der Technik und des Patents bereits durch ihre Zusammensetzung. (6) Ceramic Bulletin (aaO) betrifft das Sol-Gel-Verfahren zur Herstellung komple-

xer Oxidfilme. Der Mehrschichtenaufbau einer Festelektrolytfolie für eine Hochtemperaturbrennstoffzelle ist nicht Thema dieser Druckschrift. Zu (7) DE 39 22 673 A1 und (8) US 44 76 198 hat bereits die Prüfungsstelle festgestellt, daß sie dem Patentbegehren nicht patenthindernd entgegenstehen. So betrifft (7) keinen Mehrschichtenaufbau und (8) den geometrischen Aufbau einer Brennstoffzelle und die Anordnung der Elektrolyt-, Kathoden- und Anodenteile. Mehrschichtelektrolytfolien der beanspruchten Zusammensetzung werden auch in (7) und (8) nicht beschrieben.

3. Die Entwicklung der beanspruchten Elektrolytfolie beruht auch auf der erforderlichen erfinderischen Tätigkeit.

Die Erfindung betrifft eine Elektrolytfolie, die in planaren Hochtemperaturbrennstoffzellen eingesetzt werden soll, wie sie zB in der DE 39 22 673 A1 oder der US 44 76 198 beschrieben sind. Bedingt durch die hohen Temperaturen treten beim Betrieb solcher Brennstoffzellen jedoch Probleme unter anderem hinsichtlich des Wirkungsgrades der Zelle, der Langzeitstabilität und der Abdichtungen auf. Mit der Erfindung soll daher die Aufgabe gelöst werden, einen Festelektrolyten für eine planare Hochtemperaturbrennstoffzelle anzugeben, der bei einer niedrigeren Temperatur betrieben werden kann und dabei eine ausreichende chemische Stabilität und ebenso eine ausreichende Leitfähigkeit aufweist, um einen wirtschaftlichen Langzeitbetrieb und einen hohen Wirkungsgrad der Brennstoffzelle zu gewährleisten.

Gelöst werden soll diese Aufgabe durch eine Elektrolytfolie, bestehend aus einem keramischen Mehrschichtenaufbau aus

1. einer mechanisch stabilen frei tragenden Schicht (1) eines keramischen Materials, dessen Ionenleitfähigkeit größer ist als die von yttriumstabilisiertem Zirkoniumoxid und
2. einer relativ dazu wesentlich dünneren Elektrolytschicht (2) aus yttriumstabilisiertem Zirkoniumoxid, wobei

3. die mechanisch stabile Schicht (1) aus mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid und teilstabilisiertem Zirkoniumoxid ausgewählt ist.

Der hier angesprochene Durchschnittsfachmann ist ein Ingenieur mit mehrjähriger Erfahrung bei Entwicklung und Bau von Hochtemperaturbrennstoffzellen, dem die entgegengehaltenen Druckschriften bekannt sind. Dieser Fachmann kennt zwar aus dem zitierten Stand der Technik die anspruchsgemäßen Materialien, die im Zusammenhang mit dem Aufbau von Hochtemperaturbrennstoffzellen genannt werden. Er kennt damit auch die Stoffeigenschaften von mit Yttrium stabilisiertem Zirkoniumoxid (YSZ), teilstabilisiertem Zirkoniumoxid bzw mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid. Es ist auch bekannt, ein- oder mehrschichtige (dh drei und mehr Schichten) Elektrolyte zu verwenden. Aber dennoch ist bisher der Fachmann nicht auf die Idee gekommen, eine patentgemäße zweischichtige Elektrolytfolie zu schaffen, bei der eine frei tragende mechanisch stabile Schicht aus mit Gadolinium modifiziertem Ceroxid oder teilstabilisiertem Zirkoniumoxid mit einer wesentlich dünneren Elektrolytschicht aus YSZ kombiniert wird, und mit einer solchen zweischichtigen Elektrolytfolie die Betriebstemperaturen einer Hochtemperaturbrennstoffzelle so weit zu erniedrigen, daß damit die angestrebten Vorteile erreicht werden.

Diese beanspruchte Elektrolytfolie, über deren gewerbliche Anwendbarkeit keine Zweifel bestehen, ist daher patentfähig.

Die Gründe für die Neuheit und erfinderische Tätigkeit bei der Entwicklung der beanspruchten Elektrolytfolie tragen auch das zu ihrer Herstellung beanspruchte Verfahren und deren Verwendung, so daß auch diese patentfähig sind.

Die jeweiligen Unteransprüche betreffen vorteilhafte Ausgestaltungen der übergeordneten Sach- bzw Verfahrensansprüche und sind daher mit diesen ebenfalls patentfähig.

Kahr

Deiß

Jordan

Schroeter

Ko