



BUNDESPATENTGERICHT

14 W (pat) 32/04

(Aktenzeichen)

Verkündet am
24. April 2007

...

BESCHLUSS

In der Beschwerdesache

betreffend die Patentanmeldung 198 41 230.4-41

...

hat der 14. Senat (Technischer Beschwerdesenat) des Bundespatentgerichts auf die mündliche Verhandlung vom 24. April 2007 unter Mitwirkung ...

beschlossen:

Der angefochtene Beschluss wird aufgehoben und das Patent erteilt.

Bezeichnung: Verfahren zur Synthese von auf Flugasche basierendem Zeolith-Y

Anmeldetag: 9. September 1998

Die Priorität der Anmeldung in Indien vom 24. Juli 1998 ist in Anspruch genommen.

(Aktenzeichen der Erstanmeldung 2163/Del/98).

Der Erteilung liegen folgende Unterlagen zugrunde:

Patentansprüche 1 und 2, überreicht in der mündlichen Verhandlung vom 24. April 2007

ursprüngliche Beschreibung Seiten 1 bis 4 und 7 bis 25,

Beschreibung Seiten 5 und 6, überreicht in der mündlichen Verhandlung vom 24. April 2007,

2 Seiten Zeichnungen

Figuren 1 und 2, gemäß Offenlegungsschrift.

Gründe

I

Mit Beschluss vom 26. Januar 2004 hat die Prüfungsstelle für Klasse C 01 B des Deutschen Patent- und Markenamts die Patentanmeldung mit der Bezeichnung

„Verfahren zur Synthese von auf Flugasche basierendem Zeolith-Y“

zurückgewiesen.

Dem Beschluss liegen die Patentansprüche 1 bis 5 vom 15. Januar 2002 zu Grunde, zu deren Wortlaut auf den Akteninhalt verwiesen wird. Die Zurückweisung ist im Wesentlichen damit begründet, das Verfahren nach Patentanspruch 1 vom 15. Januar 2002 beruhe gegenüber dem durch die Entgegenhaltungen

- (1) Ind. Eng. Chem. Res. Vol. 37, No. 1, 1998, Seiten 71 bis 78
und
- (3) DD 227 686 A1

belegten Stand der Technik nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit. Aus (1) sei ein Verfahren zur Herstellung von Zeolithen durch den Schmelzaufschluss von Flugasche mittels Natriumhydroxid bekannt, das folgende Verfahrensschritte umfasse:

- (a) Mischen von Flugasche mit Natriumhydroxid in einem Verhältnis von 1 : 1,2,
- (b) Erwärmen der Schmelzflußmischung auf 550°C für 1 Stunde,
- (c) Mahlen der Schmelzmasse und Auflösen in destilliertem Wasser gefolgt von einer Alterung für etwa einen Tag,

- (d) Unterziehen der Aufschlammung einer hydrothermalen Kristallisation.

Weiter sei der Druckschrift (3), in der ein Verfahren zur Herstellung von Zeolithen - beispielsweise durch hydrothermale Reaktion eines Gels, hergestellt aus einer Aluminiumquelle in Anwesenheit von Wasser und Alkali - beschrieben sei, zu entnehmen, dass die entstandenen Zeolithkristalle von der Mutterlauge abgetrennt, gewaschen und getrocknet würden. Darüber hinaus besage die Lehre der (3), dass die Synthesebedingungen bei der hydrothermalen Reaktion (z. B. molare Verhältnisse der Komponenten, Struktur der Komponenten, Kristallisationstemperatur, Kristallisationszeit, Scherkrafteinwirkung) einen entscheidenden Einfluss auf die Art des erzeugten Zeolithen hätten. Somit seien sämtliche Schritte des anmeldungsgemäßen Verfahrens aus den Druckschriften (1) und (3) bekannt. Die in Anspruch 1 zusätzlich enthaltenen Angaben zu dem erzeugten Zeolith beträfen keine Verfahrensmerkmale, sondern sich auf Grund des Verfahrens zwangsläufig einstellende Eigenschaften.

Gegen diesen Beschluss richtet sich die Beschwerde des Anmelders, mit der er sein Patentbegehren mit den in der mündlichen Verhandlung überreichten Patentansprüchen 1 bis 2 und einer hieran angepassten Beschreibung weiterverfolgt. Der geltende Patentanspruch 1 lautet nach Korrektur eines Schreibfehlers:

„Verfahren für die Synthese von auf Flugasche basierendem Zeolith-Y (FAZ-Y) , wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Zerkleinern und Mischen von Flugasche oder vorbehandelter Flugasche mit Natriumhydroxid in einem Verhältnis im Bereich von 1 : 0,4 - 1 : 1,2, um eine feine, homogene Schmelzflußmischung zu erhalten, wobei die vorbehandelte Flugasche durch ein direktes Behandeln von Flugasche mit

einer Mineralsäure in einem Flugasche : Mineralsäure-Verhältnis von 0,25 : 1 hergestellt wird,

- (b) Erwärmen der Schmelzflußmischung in einem Inertgefäß bei etwa 500 - 600°C für etwa 1 - 2 Stunden, um eine Schmelzmasse zu erhalten,
- (c) Kühlen, Mahlen und Mischen der Schmelzmasse in destilliertem Wasser für etwa 8 - 12 Stunden,
- (d) Unterziehen der Aufschlämmung einer hydrothermalen Kristallisation bei etwa 90 - 110°C für 8 - 12 Stunden, um FAZ-Y-Kristalle zu erhalten,
- (e) Waschen der Kristalle mit Wasser und dann Unterziehen der gewaschenen Kristalle einem Ofentrocknen bei 50 - 60°C, um FAZ-Y-Kristalle mit folgenden Eigenschaften zu erhalten:
 - Calciumbindevermögen bis zu 420 meq/100 g,
 - Durchschnittliche Teilchengröße (d50) von weniger als 6 Mikron,
 - Kristalinität von etwa 90 - 95 %,
 - Kubische Kristallstruktur,
 - Spezifische Oberfläche von etwa 550 m²/g;
- (f) optionales Unterwerfen der in Schritt (e) erhaltenen FAZ-Y-Kristalle einer weiteren Silika-Anreicherung, die folgende Schritte umfasst:
 - Behandeln von Na-FAZ-Y mit einer Calciumlösung, um Ca-FAZ-Y zu erhalten,

- Behandeln von Ca-FAZ-Y mit Ethylendiamintetraessigsäure, um ein Chelat-FAZ-Y-Produkt zu erhalten,
- Erwärmen unter Rückfluss für 8 - 10 h, um entaluminiertes FAZ-Y zu erhalten, und
- Waschen und Trocknen des Produkts.“

Zum Wortlaut des hierauf unmittelbar rückbezogenen Unteranspruchs 2 wird auf den Akteninhalt verwiesen.

Der Anmelder trägt vor, das beanspruchte Verfahren sei gegenüber dem entgegengehaltenen Stand der Technik, auch unter Berücksichtigung der in einer Zwischenverfügung genannten weiteren Druckschrift

(4) DE 26 51 446 A1

neu und erfinderisch.

Der Anmelder beantragt,

den angefochtenen Beschluss aufzuheben und das Patent zu erteilen auf der Grundlage der Patentansprüche 1 bis 2, der Beschreibung Seiten 5 und 6, jeweils überreicht in der mündlichen Verhandlung, sowie ursprüngliche Beschreibung Seiten 1 bis 4 und 7 bis 25 und 2 Seiten Zeichnungen, Figuren 1 und 2 gemäß Offenlegungsschrift.

Wegen weiterer Einzelheiten wird auf den Akteninhalt Bezug genommen.

II

Die Beschwerde ist zulässig und auch begründet.

1. Gegen die Zulässigkeit der geltenden Ansprüche 1 und 2 bestehen keine Bedenken.

Anspruch 1 geht inhaltlich auf die ursprünglichen Ansprüche 1, 2, 7 und 8 zurück. Der geltende Anspruch 2 entspricht dem ursprünglichen Anspruch 5.

2. Das Verfahren nach dem geltenden Anspruch 1 ist neu.

Es unterscheidet sich von den aus (1) ableitbaren Verfahren zur Synthese von auf Flugasche basierenden Zeolithen schon durch die unter (d) zusammengefassten Bedingungen bei der hydrothermalen Kristallisation. Gemäß (d) erfolgt diese in der (nach (c) erhaltenen) Aufschlämmung bei etwa 90 bis 110°C für 8 bis 12 h, nach (1) hingegen im (abzentrifugierten) Überstand des aufgeschlammten Schmelzprodukts bei 60°C für nicht näher definierte Zeiträume (S. 72 Abs. 2/3). Im Übrigen sind in (1) keine spezifischen Bedingungen für die Herstellung von Zeolith-Y offenbart.

Die Entgegenhaltung (4) betrifft keine Herstellung von Zeolith-Y aus Flugasche, sondern aus Lösungen, zu deren Herstellung SiO₂-haltige Abfallstäube aus der Herstellung von Siliziummetall und Siliziumlegierungen, insbesondere Ferrosilicium, aufbereitet werden (Anspruch 1 i. V. m. 1. Abs. der Beschreibung, handschr. S. 6 Abs. 1 bis S. 7 Abs. 1, S. 8 Abs. 3 sowie S. 13 Beispiel 1 unter a) und b)).

In (3) ist Zeolith-Y überhaupt nicht erwähnt und die im Prüfungsverfahren außerdem in Betracht gezogene DE 43 34 326 A1 (2) liegt noch ferner, weil sie sich nur auf die Behandlung von Flugasche mit Mineralsäure bezieht (Anspruch 1).

3. Der Gegenstand des geltenden Anspruchs 1 beruht auch auf einer erfindnerischen Tätigkeit.

Der Anmeldung liegt die Aufgabe zu Grunde, ein Verfahren für die Synthese von Zeolith-Y aus Flugasche bereitzustellen (S. 3 le. Abs. der geltenden Beschreibung).

Diese Aufgabe wird durch ein Verfahren mit den im Anspruch 1 aufgeführten Maßnahmen gelöst.

Diese Lösung ist durch die dem Senat vorliegenden Druckschriften nicht nahegelegt.

Als nächstgelegener Stand der Technik ist das aus (1) bekannte Verfahren zur Herstellung von Flugasche-Zeolithen (A, P und Faujasit) anzusehen, das den im geltenden Anspruch 1 mit (a) und (b) bezeichneten Merkmalen weitgehend vergleichbare Schritte aufweist (S. 72 li. Sp. Abs. 2 i. V. m. le. Z. der Tabelle 1 u. S. 71 Abstract Z. 1 bis 3). Wie unter II.2. ausgeführt, wird nach (1) bei der hydrothermalen Kristallisation jedoch nicht gemäß Merkmal (d) verfahren und es werden keine spezifischen Bedingungen für die Bildung von Zeolith-Y angegeben. Darüber hinaus wird die vermahlene Schmelzmasse 24 h mit Wasser verrührt (S. 72 li. Sp. Abs. 2) und nicht etwa 8 bis 10 h wie nach Merkmal (c) des Anspruchs 1 und schließlich liefert (1) keinen Hinweis auf ein Waschen und Trocknen der Zeolithkristalle im Sinne der Verfahrensstufe (e).

Zu einer dahingehenden Abwandlung des in (1) beschriebenen Verfahrens unter Ausrichtung auf die Erzeugung von Zeolith-Y liefert der Stand der Technik dem Fachmann keine hinreichende Veranlassung. Zwar liegt ein Waschen und Trocknen der durch Kristallisation erhaltenen Zeolithkristalle - wie auch in (4) Anspruch 1 angegeben - nach Auffassung des Senates im Rahmen des Routinekönnens. Dagegen ist es fraglich, ob die in (4) angegebenen Bedingungen für die

hydrothermale Kristallisation von Zeolith-Y aus Lösungen, nämlich 75 bis 100°C für 8 bis 48 h nach Anspruch 1, dem Fachmann eine Anregung vermitteln, für die Kristallisation von Zeolith-Y nach dem allgemeinen Verfahren gemäß (1) vergleichbare Bedingungen in Betracht zu ziehen. Die nach (4) bei der Zeolithkristallisation eingesetzten Lösungen liegen nämlich von ihrer Bildungsweise, schon ausgehend vom Ausgangsmaterial, so weit entfernt von den in (1) beschriebenen wässrigen Auszügen einer aufgemahlten Flugasche/Natriumhydroxid-Schmelzmasse, dass sich der Fachmann - dem die Abhängigkeit der hydrothermalen Kristallisation von Zeolith von der Beschaffenheit der eingesetzten Lösungen bekannt ist - eher an den in (1) ermittelten Parametern orientieren wird. Dies gilt auch unter Berücksichtigung des Umstandes, dass spezielle Herstellungsbedingungen für Zeolith-Y in (1) nicht genannt sind. Denn in (1) sind mehrfach Faujasite angesprochen und dem Fachmann ist geläufig, dass Zeolith-Y isostrukturell mit Faujasit und Zeolith-X, einer aluminiumreichen (bzw. silikatarmen) Variante des Zeolith-Y ist (geltende Unterlagen S. 2 Z.1/2). In Übereinstimmung mit dieser Bewertung ist festzustellen, dass die Autoren von (1) die bereits lange bekannten Versuchsbedingungen gemäß (4), deren Kenntnis ihnen unterstellt werden muss, überhaupt nicht für eine mögliche Herstellung von Zeolith-Y in Erwägung gezogen haben.

Jedenfalls war aber für den Fachmann nicht vorhersehbar, dass das Zusammenwirken der in Rede stehenden Kristallisationstemperatur und -dauer mit der erheblich von 24 h auf 8 bis 10 h verkürzten Alterungsdauer und der Kristallisation aus der Aufschlammung statt aus dem Überstand die Herstellung von Zeolith-Y aus Flugasche ermöglicht.

Die ferner liegenden Druckschriften (2) und (3) können zu keiner anderen Beurteilung führen.

4. Nach alledem ist Anspruch 1 gewährbar. Der Unteranspruch 2 betrifft eine das Maß platter Selbstverständlichkeit übertreffende Ausführungsform des Verfahrens nach Anspruch 1 und ist daher mit diesem gewährbar.

Bei dieser Sachlage war der angefochtene Beschluss aufzuheben und das Patent 198 41 230 antragsgemäß zu erteilen.

gez.

Unterschriften