



BUNDESPATENTGERICHT

IM NAMEN DES VOLKES

URTEIL

An Verkündungs Statt
zugestellt am

3 Ni 16/07 (EU)

(Aktenzeichen)

...

In der Patentnichtigkeitssache

...

betreffend das europäische Patent 0 590 053

(DE 692 22 417)

hat der 3. Senat (Nichtigkeitssenat) des Bundespatentgerichts auf Grund der mündlichen Verhandlung vom 13. Oktober 2009 unter Mitwirkung der Vorsitzenden Richterin Dr. Schermer sowie der Richter Engels und Dipl.-Chem. Dr. Egerer, der Richterin Dipl.-Chem. Zettler und des Richters Dipl.-Chem. Dr. Lange

für Recht erkannt:

1. Das europäische Patent 0 590 053 B23 wird mit Wirkung für das Hoheitsgebiet der Bundesrepublik Deutschland teilweise für nichtig erklärt, soweit die Patentansprüche 1 bis 23 und 26 bis 56, 47, 50, 53 bis 56 über die nachfolgende Fassung hinausgehen:
 - „1. A method of producing 4-aminodiphenylamine (4-ADPA) or substituted derivatives thereof comprising the steps of bringing aniline or aniline derivatives and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system, characterized in that aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are being reacted in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates, and that the 4-aminodiphenylamine intermediates are being reduced under conditions which produce 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof, wherein said base is a tetraalkylammonium hydroxide or an alkyl substituted diammonium hydroxide.

2. Method of Claim 1 wherein said suitable solvent system includes a solvent selected from aniline, nitrobenzene, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, N-methylpyrrolidone, pyridine, toluene, hexane, ethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ethyl amine and mixtures thereof.
3. Method of Claim 2 wherein said solvent is selected from aniline, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, toluene and mixtures thereof.
4. Method of Claim 2 wherein said suitable solvent system includes a protic solvent.
5. Method of Claim 4 wherein said protic solvent is selected from methanol, water and mixtures thereof.
6. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes aniline and up to about 4 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
7. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes dimethylsulfoxide and up to about 8 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
8. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes aniline and up to about 3 v/v% methanol based on the volume of the reaction mixture.
9. Method of Claim 1 wherein said suitable temperature is from about -10° C to about 150° C.

13. The method of Claim 1 wherein said base is combined with aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture, which mixture is then brought into reactive contact with nitrobenzene.
14. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are combined to form a mixture to which the base is added.
15. The method of Claim 1 wherein said solvent is aniline.
16. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under aerobic conditions.
17. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under anaerobic conditions.
18. A method of Claim 1 wherein said 4-ADPA intermediates are reduced utilizing hydrogen in the presence of a suitable catalyst.
19. A method of Claim 18 wherein said catalyst is platinum on carbon, palladium on carbon or nickel.
20. The method of Claim 1 wherein a desiccant is present during step (b) to control the amount of protic material present during the reaction of aniline or substituted aniline derivative and nitrobenzene.

21. The method of Claim 20 wherein said desiccant is selected from the group consisting of anhydrous sodium sulfate, molecular sieves, calcium chloride, tetramethyl ammonium hydroxide dihydrate, anhydrous potassium hydroxide, anhydrous sodium hydroxide and activated alumina.
22. The method of Claim 1 wherein the amount of protic material in step (b) is controlled by the continuous distillation of said protic material.
23. The method of Claim 22 wherein said protic material is water and said water is removed by continuous azeotropic distillation utilizing the water/aniline azeotrope.
26. A method of producing alkylated 4-aminodiphenylamines or substituted derivatives thereof comprising the steps of bringing aniline or aniline derivatives and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system, characterized in that aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are being reacted in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates, that the 4-aminodiphenylamine intermediates are being reduced to produce 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof; and that the 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof are reductively alkylated, wherein said base is a tetraalkylammonium hydroxide or an alkyl substituted diammonium hydroxide.
27. Method of Claim 26 wherein said suitable solvent system includes a solvent selected from aniline, nitrobenzene, di-

methylsulfoxide, dimethylformamide, N-methylpyrrolidone, pyridine, toluene, hexane, ethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ethyl amine and mixtures thereof.

28. Method of Claim 27 wherein said solvent is selected from aniline, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, toluene and mixtures thereof.
29. Method of Claim 27 wherein said suitable solvent system includes a protic solvent.
30. Method of Claim 29 wherein said protic solvent is selected from methanol, water and mixtures thereof.
31. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes aniline and up to about 4 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
32. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes dimethylsulfoxide and up to about 8 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
33. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes aniline and up to about 3 v/v% methanol based on the volume of the reaction mixture.
34. Method of Claim 27 wherein said suitable temperature is from about -10° C to about 150° C.
38. The method of Claim 27 wherein said base is combined with aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic

moiety, to form a mixture, which mixture is then brought into reactive contact with nitrobenzene.

39. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are combined to form a mixture to which the base is added.
40. The method of Claim 27 wherein said solvent is aniline.
41. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under aerobic conditions.
42. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under anaerobic conditions.
43. The method of Claim 26 wherein said 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof are reductively alkylated utilizing a ketone selected from the group consisting of acetone, methylisobutylketone, methylisoamylketone, and 2-octanone.
44. The method of Claim 26 wherein a desiccant is present during step (b) to control the amount of protic material present during the reaction of aniline or substituted aniline derivative and nitrobenzene.
45. The method of Claim 44 wherein said desiccant is selected from the group consisting of anhydrous sodium sulfate, molecular sieves, calcium chloride, tetramethyl ammonium

hydroxide dihydrate, anhydrous potassium hydroxide, anhydrous sodium hydroxide and activated alumina.

46. The method of Claim 26 wherein the amount of protic material in step (b) is controlled by the continuous distillation of said protic material.
47. The method of Claim 46 wherein said protic material is water and said water is removed by continuous azeotropic distillation utilizing the water/aniline azeotrope.
50. A method according to claim 1 wherein said base is combined with said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture and said nitrobenzene is added to said mixture at a controlled rate.
55. Tetrasubstituted ammonium salts of 4-nitrosodiphenylamine and substituted derivatives thereof wherein each substituent of the tetrasubstituted ammonium ion is independently selected from the group consisting of alkyl, aryl and arylalkyl groups.
56. The salts of Claim 55 selected from the group consisting of tetramethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, tetrapropyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, tetrabutyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, benzyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, phenyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine and substituted derivatives thereof."

Die weitergehende Klage wird abgewiesen.

2. Die Kosten des Rechtsstreits werden gegeneinander aufgehoben.
3. Das Urteil ist hinsichtlich der Kosten gegen Sicherheitsleistung in Höhe von 120 % des zu vollstreckenden Betrages vorläufig vollstreckbar.

Tatbestand

Die Beklagte ist eingetragene Inhaberin des am 27. März 1992 angemeldeten und unter anderem für das Hoheitsgebiet der Bundesrepublik Deutschland erteilten und am 24. September 1997 veröffentlichten europäischen Patents EP 0 590 053 B1, das am 12. April 2006 durch die Entscheidung der Technischen Beschwerdekammer des Europäischen Patentamts im Beschwerdeverfahren in der verfahrensgegenständlichen Fassung der EP 0 590 053 B2 aufrechterhalten wurde (Streitpatent) und die Bezeichnung „Method of Preparing 4-Aminodiphenylamine“ trägt. Das Streitpatent nimmt die Priorität US 719876 vom 21. Juni 1991 in Anspruch und weist in der maßgeblichen englischen Fassung insgesamt 58 Patentansprüche folgenden Wortlauts auf:

1. A method of producing 4-aminodiphenylamine (4-ADPA) or substituted derivatives thereof comprising the steps of bringing aniline and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system, **characterized in that** aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are being reacted in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates, and that the 4-aminodiphenylamine intermediates are being reduced under conditions which produce 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof.
2. Method of Claim 1 wherein said suitable solvent system includes a solvent selected from aniline, nitrobenzene, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, N-methylpyrrolidone, pyridine, toluene, hexane, ethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ethyl amine and mixtures thereof.
3. Method of Claim 2 wherein said solvent is selected from aniline, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, toluene and mixtures thereof.
4. Method of Claim 2 wherein said suitable solvent system includes a protic solvent.

5. Method of Claim 4 wherein said protic solvent is selected from methanol, water and mixtures thereof.
6. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes aniline and up to about 4 v/v% water based on the total volume of the reaction mixture.
7. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes dimethylsulfoxide and up to about 8 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
8. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes aniline and up to about 3 v/v% methanol based on the volume of the reaction mixture.
9. Method of Claim 1 wherein said suitable temperature is from about -10°C to about 150°C.
10. Method of Claim 1 wherein said suitable base is selected from organic and inorganic bases.
11. The method of Claim 10 wherein said organic and inorganic bases include alkali metals, alkali metal hydrides, alkali metal hydroxides, alkali metal alkoxides, phase transfer catalysts in conjunction with a base source, amines, crown ether in conjunction with a base source and mixtures thereof.
12. The method of Claim 1 wherein said base is selected from an aryl ammonium, alkyl ammonium, aryl/alkyl ammonium and alkyl diammonium salt in conjunction with a base source.
13. The method of Claim 1 wherein said base is combined with aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture, which mixture is then brought into reactive contact with nitrobenzene.
14. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are combined to form a mixture to which the base is added.
15. The method of Claim 1 wherein said solvent is aniline and said base is a tetraalkylammonium hydroxide or an alkyl substituted diammonium hydroxide.
16. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under aerobic conditions.
17. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under anaerobic conditions.
18. A method of Claim 1 wherein said 4-ADPA intermediates are reduced utilizing hydrogen in the presence of a suitable catalyst.
19. A method of Claim 18 wherein said catalyst is platinum on carbon, palladium on carbon or nickel.
20. The method of Claim 1 wherein a desiccant is present during step (b) to control the amount of protic material present during the reaction of aniline or substituted aniline derivative and nitrobenzene.
21. The method of Claim 20 wherein said desiccant is selected from the group consisting of anhydrous sodium sulfate, molecular sieves, calcium chloride, tetramethyl ammonium hydroxide dihydrate, anhydrous potassium hydroxide, anhydrous sodium hydroxide and activated alumina.
22. The method of Claim 1 wherein the amount of protic material in step (b) is controlled by the continuous distillation of said protic material.
23. The method of Claim 22 wherein said protic material is water and said water is removed by continuous azeotropic distillation utilizing the water/aniline azeotrope.
24. The method of Claim 1 wherein the substituent of said aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, is selected from the group consisting of halides, -NO₂, -NH₂, alkyl groups, alkoxy groups, -SO₃, -COOH and aryl, aralkyl or alkaryl groups containing at least one -NH₂ group wherein halides are selected from the group consisting

of chloride, bromide, and fluoride.

25. The method of Claim 24 wherein said aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, are selected from the group consisting of 2-methoxyaniline, 4-methoxyaniline, 4-chloroaniline, p-toluidine, 4-nitroaniline, 3-bromoaniline, 3-bromo-4-aminotoluene, p-aminobenzoic acid, 2,4-diaminotoluene, 2,5-dichloroaniline, 1,4-phenylene diamine, 4,4'-methylene dianiline and 1,3,5-triaminobenzene.
26. A method of producing alkylated p-phenylenediamines or substituted derivatives thereof comprising the steps of bringing aniline and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system, **characterized in that** aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are being reacted in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates, that the 4-aminodiphenylamine intermediates are being reduced to produce 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof; and that the 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof are reductively alkylated.
27. Method of Claim 26 wherein said suitable solvent system includes a solvent selected from aniline, nitrobenzene, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, N-methylpyrrolidone, pyridine, toluene, hexane, ethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ethyl amine and mixtures thereof.
28. Method of Claim 27 wherein said solvent is selected from aniline, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, toluene and mixtures thereof.
29. Method of Claim 27 wherein said suitable solvent system includes a protic solvent.
30. Method of Claim 29 wherein said protic solvent is selected from methanol, water and mixtures thereof.
31. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes aniline and up to about 4 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
32. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes dimethylsulfoxide and up to about 8 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
33. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes aniline and up to about 3 v/v% methanol based on the volume of the reaction mixture.
34. Method of Claim 27 wherein said suitable temperature is from about -10°C to about 150°C.
35. Method of Claim 27 wherein said suitable base is selected from organic and inorganic bases.
36. The method of Claim 35 wherein said organic and inorganic bases include alkali metals, alkali metal hydrides, alkali metal hydroxides, alkali metal alkoxides, phase transfer catalysts in conjunction with a base source, amines, crown ethers in conjunction with a base source and mixtures thereof.
37. The method of Claim 27 wherein said base is selected from an aryl ammonium, alkyl ammonium, aryl/alkyl ammonium and alkyl diammonium salt in conjunction with a base source.
38. The method of Claim 27 wherein said base is combined with aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture, which mixture is then brought into reactive contact with nitrobenzene.
39. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are combined to form a mixture to which the base is added.
40. The method of Claim 27 wherein said solvent is aniline and said base is a tetraalkylammonium hydroxide or an alkylsubstituted diammonium hydroxide.
41. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under aerobic conditions.

42. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under anaerobic conditions.
43. The method of Claim 26 wherein said 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof are reductively alkylated utilizing a ketone selected from the group consisting of acetone, methylisobutylketone, methylisoamylketone, and 2-octanone.
44. The method of Claim 26 wherein a desiccant is present during step (b) to control the amount of protic material present during the reaction of aniline or substituted aniline derivative and nitrobenzene.
45. The method of Claim 44 wherein said desiccant is selected from the group consisting of anhydrous sodium sulfate, molecular sieves, calcium chloride, tetramethyl ammonium hydroxide dihydrate, anhydrous potassium hydroxide, anhydrous sodium hydroxide and activated alumina.
46. The method of Claim 26 wherein the amount of protic material in step (b) is controlled by the continuous distillation of said protic material.
47. The method of Claim 46 wherein said protic material is water and said water is removed by continuous azeotropic distillation utilizing the water/aniline azeotrope.
48. The method of Claim 26 wherein the substituent of said substituted aniline derivatives is selected from the group consisting of halides, -NO₂, -NH₂, alkyl groups, alkoxy groups, -SO₃, -COOH and aryl, aralkyl or alkaryl groups containing at least one -NH₂ group wherein halides are selected from the group consisting of chloride, bromide and fluoride.
49. The method of Claim 48 wherein said substituted aniline derivatives are selected from the group consisting of 2-methoxyaniline, 4-methoxyaniline, 4-chloroaniline, p-toluidine, 4-nitroaniline, 3-bromoaniline, 3-bromo-4-aminotoluene, p-aminobenzoic acid, 2,4-diaminotoluene, 2,5-dichloroaniline, 1,4-phenylene diamine, 4,4'-methylene dianiline and 1,3,5-triaminobenzene.
50. A method according to claim 1 wherein said base is combined with said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture and said nitrobenzene is added to said mixture at a controlled rate.
51. A method of producing one or more 4-aminodiphenylamine intermediates comprising:
 - a) bringing aniline and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system; and
 - b) reacting the aniline and nitrobenzene in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates;

wherein said suitable solvent is aniline, said protic material is water, said base is tetramethyl ammonium hydroxide dihydrate, which is combined with aniline, to which mixture nitrobenzene is added at a controlled rate, the reaction temperature is 50°C to 65°C, the reaction is carried out under anaerobic conditions and the amount of protic material present at the beginning of the reaction is about 9.8 volume % water based on the total volume of the reaction mixture.

52. A method of producing one or more 4-aminodiphenylamine intermediates comprising:
 - a) bringing aniline and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system; and
 - b) reacting the aniline and nitrobenzene in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates;

wherein said suitable solvent is aniline, said protic material is water, said base is tetrabutyl ammonium hydroxide which is combined with aniline, to which mixture nitrobenzene is added at a controlled rate, the reaction temperature is 70°C, the reaction is carried out under anaerobic conditions under continuous removal of water by azeotropic distillation, and the amount of protic material present at the beginning of the reaction is about 13.8 volume % based on the total volume of the reaction mixture.

53. Tetrasubstituted ammonium salts of 4-nitrodiphenylamine and substituted derivatives thereof wherein each substituent of the tetrasubstituted ammonium ion is independently selected from the group consisting of alkyl, aryl and arylalkyl groups.
54. The salts of Claim 53 selected from the group consisting of tetramethyl ammonium salt of 4-nitrodiphenylamine, tetrapropyl ammonium salt of 4-nitrodiphenylamine, tetrabutyl ammonium salt of 4-nitrodiphenylamine, benzyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrodiphenylamine, phenyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrodiphenylamine and substituted derivatives thereof.
55. Tetrasubstituted ammonium salts of 4-nitrosodiphenylamine and substituted derivatives thereof wherein each substituent of the tetrasubstituted ammonium ion is independently selected from the group consisting of alkyl, aryl and arylalkyl groups.
56. The salts of Claim 55 selected from the group consisting of tetramethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, tetrapropyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, tetrabutyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, benzyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, phenyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine and substituted derivatives thereof.
57. Alkyl substituted diammonium salts of 4-nitrodiphenylamine or 4-nitrosodiphenylamine wherein each alkyl substituent of the alkyl substituted diammonium ion is independently selected.
58. The salts of Claim 57 selected from the group consisting of bis-dibutylethyl hexamethylene diammonium salt of 4-nitrodiphenylamine and bis-dibutylethyl hexamethylene diammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine.

Die Klägerin, die das Streitpatent im Umfang der Patentansprüche 1 bis 23, 26 bis 47, 50 sowie 53 bis 56 angreift und den Nichtigkeitsgrund fehlender Patentfähigkeit geltend macht, führt aus, dass der Gegenstand des Patents, soweit angegriffen, nicht mehr neu sei und darüber hinaus auch nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit beruhe. Mit Schriftsatz vom 18. September 2009 hat sie ergänzend mangelnde Offenbarung bzw. Ausführbarkeit hinsichtlich des Merkmals „in the presence of a controlled amount of protic material“ vorgebracht.

Die Klägerin stützt ihre Klage auf folgende Druckschriften, Dokumente und Unterlagen:

- NK3 Chem. Ber. 36 (1903) 4135-4138
- NK3a Organic Analytical Reagents 3 (1947) 404-409
- NK4 J. Org. Chem. 43 (1983) 1700-1705
- NK5 Tetrahedron Lett. 31 (1990) 3217-3220
- NK6 Can. J. Chem. 45 (1967) 911-924
- NK7 Auszug zu DMSO aus FLUKA-Katalog 2005/2006

- NK8 Hubeld „Laborpraxis, Teil 3: Trennungsmethoden“, 5. vollständig überarbeitete Aufl. 1996, S. 29
- NK9 US 5 117 063
- NK10 NK10a: Verfahren vor dem US-ITC, pages 90 bis 93, 406 bis 409 , sowie Mitteilung der ITC
NK10b: Mitteilung der ITC v. 3. Juni 2008, Investig.No. 337-TA-533
- NK11 Philip Bodsky, in: Chemical Week June 17, 1992, S. 77, 79, 80
- NK12 WO 93/00324 A1
- NK13 NK13a: Eingabe der Beklagten an das US-Patentamt, Seiten 111-083
NK13b-1: Auszüge aus der Entscheidung der Einspruchsabteilung des Europäischen Patentamts, US Appl. No. 08/435607 v 5. Mai 1995 zu EP 0 590 053 vom 16. Juni 2000
NK13b-2: Beschwerdebegündung der Nichtigkeitsbeklagten im Einspruchsverfahren vor dem Europäischen Patentamt, betr. EP 0 590 053 vom 24. Oktober 2000
- NK14 Nacharbeitung der NK3 im europäischen Einspruchsverfahren
- NK15 P. Sykes „Reaktionsmechanismen in der organischen Chemie“, 9. überarb. Aufl., Verlag Chemie 1988, S. 49 bis 50, Kapitel 2.2.3
- NK16 Carey/Sundberg „Advanced Organic Chemistry“, 3. Aufl., 1990, Teil A, S. 579 bis 583
- NK17 Starks/Liotta „Phase Transfer Catalysis“, Academic Press Inc. 1978, S. 57, 58, 126, 127
- NK18 J. Org. Chem. 36 (1971) 170 bis 173
- NK19 Aldrich-Katalog Feinchemikalien 1986, S. 486, 1521
- NK20 Lee/Robinson „Process Development: Fine Chemicals from grams to kilograms“, Oxford University Press 1995, S. 14, 76, 77.
- NK21 US 2 927 943 A.

Die Klägerin macht geltend, das gegenständliche Verfahren des Patentanspruchs 1 des Patentanspruchs 1 sei nicht ausführbar, nicht mehr neu gegenüber dem Inhalt der NK3 oder der NK4, wobei der Fachmann den abschließenden Reduktionsschritt mitlese, im Übrigen jedoch nicht erfinderisch gegenüber NK3 und

NK4, diese jeweils für sich allein betrachtet, aber insbesondere kombiniert mit NK5 und NK6. Es trete gegenüber NK3 oder NK4 lediglich ein im Streitpatent selbst als trivial bezeichneter Reduktions(Hydrier)schritt hinzu. Des Weiteren sei auch das durch weitere Merkmale der Ansprüche 2, 3, 9, 10, 11 16, 18 bis 21 ausgebildete Verfahren gemäß Patentanspruch 1 nicht mehr neu, jedenfalls aber, wie auch die übrigen Ansprüche, nicht erfinderisch. Was die Zwischenprodukte der Patentansprüche 53 bis 56 anbelangt, so seien diese nicht erfinderisch gegenüber dem Inhalt der NK3 und der NK5.

Die Klägerin beantragt,

das Streitpatent im Umfang der Patentansprüche 1 bis 23, 26 bis 47, 50 sowie 53 bis 56 mit Wirkung für das Hoheitsgebiet der Bundesrepublik Deutschland für nichtig zu erklären.

Die Beklagte verteidigt das Patent, soweit angegriffen, mit den geänderten Fassungen der angegriffenen Patentansprüche nach Hauptantrag sowie in den Fassungen nach den Hilfsanträgen 1 und 2, jeweils überreicht in der mündlichen Verhandlung, und beantragt insoweit,

die Klage abzuweisen.

Die nach Hauptantrag verteidigte Fassung der Patentansprüche, soweit angegriffen, lautet:

„1. A method of producing 4-aminodiphenylamine (4-ADPA) or substituted derivatives thereof comprising the steps of bringing aniline or aniline derivatives and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system, characterized in that aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are being reacted in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base

and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates, and that the 4-aminodiphenylamine intermediates are being reduced under conditions which produce 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof, wherein said base is a tetraalkylammonium hydroxide or an alkyl substituted diammonium hydroxide.

2. Method of Claim 1 wherein said suitable solvent system includes a solvent selected from aniline, nitrobenzene, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, N-methylpyrrolidone, pyridine, toluene, hexane, ethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ethyl amine and mixtures thereof.
3. Method of Claim 2 wherein said solvent is selected from aniline, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, toluene and mixtures thereof.
4. Method of Claim 2 wherein said suitable solvent system includes a protic solvent.
5. Method of Claim 4 wherein said protic solvent is selected from methanol, water and mixtures thereof.
6. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes aniline and up to about 4 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
7. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes dimethylsulfoxide and up to about 8 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.

8. Method of Claim 1 wherein said solvent system includes aniline and up to about 3 v/v% methanol based on the volume of the reaction mixture.
9. Method of Claim 1 wherein said suitable temperature is from about -10 °C to about 150 °C.
13. The method of Claim 1 wherein said base is combined with aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture, which mixture is then brought into reactive contact with nitrobenzene.
14. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are combined to form a mixture to which the base is added.
15. The method of Claim 1 wherein said solvent is aniline.
16. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under aerobic conditions.
17. The method of Claim 1 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under anaerobic conditions.
18. A method of Claim 1 wherein said 4-ADPA intermediates are reduced utilizing hydrogen in the presence of a suitable catalyst.
19. A method of Claim 18 wherein said catalyst is platinum on carbon, palladium on carbon or nickel.

20. The method of Claim 1 wherein a desiccant is present during step (b) to control the amount of protic material present during the reaction of aniline or substituted aniline derivative and nitrobenzene.
21. The method of Claim 20 wherein said desiccant is selected from the group consisting of anhydrous sodium sulfate, molecular sieves, calcium chloride, tetramethyl ammonium hydroxide dihydrate, anhydrous potassium hydroxide, anhydrous sodium hydroxide and activated alumina.
22. The method of Claim 1 wherein the amount of protic material in step (b) is controlled by the continuous distillation of said protic material.
23. The method of Claim 22 wherein said protic material is water and said water is removed by continuous azeotropic distillation utilizing the water/aniline azeotrope.
26. A method of producing alkylated 4-aminodiphenylamines or substituted derivatives thereof comprising the steps of bringing aniline or aniline derivatives and nitrobenzene into reactive contact in a suitable solvent system, characterized in that aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are being reacted in a confined zone at a suitable temperature, and in the presence of a suitable base and a controlled amount of protic material to produce one or more 4-aminodiphenylamine intermediates, that the 4-aminodiphenylamine intermediates are being reduced under conditions which produce 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof; and that the 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof are reductively alkylated, wherein

said base is a tetraalkylammonium hydroxide or an alkyl substituted diammonium hydroxide.

27. Method of Claim 26 wherein said suitable solvent system includes a solvent selected from aniline, nitrobenzene, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, N-methylpyrrolidone, pyridine, toluene, hexane, ethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ethyl amine and mixtures thereof.
28. Method of Claim 27 wherein said solvent is selected from aniline, dimethylsulfoxide, dimethylformamide, toluene and mixtures thereof.
29. Method of Claim 27 wherein said suitable solvent system includes a protic solvent.
30. Method of Claim 29 wherein said protic solvent is selected from methanol, water and mixtures thereof.
31. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes aniline and up to about 4 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
32. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes dimethylsulfoxide and up to about 8 v/v% water based on the volume of the reaction mixture.
33. Method of Claim 27 wherein said solvent system includes aniline and up to about 3 v/v% methanol based on the volume of the reaction mixture.

34. Method of Claim 27 wherein said suitable temperature is from about -10° C to about 150° C.
38. The method of Claim 27 wherein said base is combined with aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture, which mixture is then brought into reactive contact with nitrobenzene.
39. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are combined to form a mixture to which the base is added.
40. The method of Claim 27 wherein said solvent is aniline.
41. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under aerobic conditions.
42. The method of Claim 27 wherein said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, and nitrobenzene are reacted under anaerobic conditions.
43. The method of Claim 26 wherein said 4-aminodiphenylamine or substituted derivatives thereof are reductively alkylated utilizing a ketone selected from the group consisting of acetone, methylisobutylketone, methylisoamylketone, and 2-octanone.
44. The method of Claim 26 wherein a desiccant is present during step (b) to control the amount of protic material present during the reaction of aniline or substituted aniline derivative and nitrobenzene.

45. The method of Claim 44 wherein said desiccant is selected from the group consisting of anhydrous sodium sulfate, molecular sieves, calcium chloride, tetramethyl ammonium hydroxide dihydrate, anhydrous potassium hydroxide, anhydrous sodium hydroxide and activated alumina.
46. The method of Claim 26 wherein the amount of protic material in step (b) is controlled by the continuous distillation of said protic material.
47. The method of Claim 46 wherein said protic material is water and said water is removed by continuous azeotropic distillation utilizing the water/aniline azeotrope.
50. A method according to claim 1 wherein said base is combined with said aniline or aniline derivatives, substituted on the aromatic moiety, to form a mixture and said nitrobenzene is added to said mixture at a controlled rate.
55. Tetrasubstituted ammonium salts of 4-nitrosodiphenylamine and substituted derivatives thereof wherein each substituent of the tetrasubstituted ammonium ion is independently selected from the group consisting of alkyl, aryl and arylalkyl groups.
56. The salts of Claim 55 selected from the group consisting of tetramethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, tetrapropyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, tetrabutyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, benzyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine, phenyltrimethyl ammonium salt of 4-nitrosodiphenylamine and substituted derivatives thereof."

Die Beklagte tritt dem Vorbringen der Kläger entgegen und macht geltend, keine der vorgebrachten Druckschriften NK3 bis NK6 betreffe ein Verfahren zur Herstellung von 4-ADPA und demzufolge gehe die Klägerin von einem Stand der Technik aus, den der mit der Aufgabe befasste Fachmann als Ausgangspunkt nicht in Betracht gezogen hätte. Vielmehr sei KW1 (US 4 122 118 A) als nächstliegender Stand der Technik anzusehen, wobei auch eine Kombination dieser Druckschrift mit NK3 bis NK6 nicht zum Gegenstand des Streitpatents führe.

Außerdem verweist sie auf die Druckschriften, Dokumente und Unterlagen KW1 bis KW33, anhand derer sich zeigen lasse, dass die Lehre von Wohl und Aue (vgl. NK3) nicht zur Herstellung von 4-Aminodiphenylamin in Betracht gezogen worden sei.

Wegen der Fassungen der Patentansprüche nach den Hilfsanträgen 1 und 2 sowie wegen des weiteren Vorbringens der Parteien wird auf die Gerichtsakte (Anlage zum Protokoll vom 6. Oktober 2009) verwiesen.

Entscheidungsgründe

Die Klage erweist sich als zulässig und als teilweise begründet. Der von der Klägerin geltend gemachte Nichtigkeitsgrund der mangelnden Patentfähigkeit, Art. 138 Abs. 1 lit a EPÜ, Art. II § 6 Abs. 1 Nr. 1 IntPatÜG der angegriffenen Patentansprüche 1 bis 23, 26 bis 47, 50 sowie 53 bis 56 führt zur Nichtigkeit des Streitpatents, soweit diese über die Fassung des Urteilsausspruch hinausgehen. Im Übrigen war die Klage abzuweisen.

I.

1. Nach den Ausführungen in der Streitpatentschrift wird gemäß dem Stand der Technik wird 4-Aminodiphenylamin (4-ADPA) hergestellt durch Umsetzung von p-Chlornitrobenzol mit einem geeigneten Anilinderivat durch nucleophile aromatische Substitution in Gegenwart eines Säurefängers bzw. Neutralisationsmittels,

wobei als Zwischenstufe 4-Nitrodiphenylamin (4-NDPA) entsteht, und durch nachfolgende Reduktion der Nitrogruppe. Nachteilig bei einem dementsprechenden Verfahren ist entstehende Salzsäure bzw. das entstehende Chlorid zur Korrosion der Reaktoren führt und im Übrigen aus dem Abwasser mit hohem Kostenaufwand entfernt werden muss. Außerdem ist mit der Herstellung der Edukte, dem p-Chlornitrobenzol und den Anilinderivaten ausgehend von Nitrobenzol und Anilin, ein zusätzlicher Syntheseaufwand verbunden (vgl. EP 0 590 053 B2 S. 2 [0002]). Daneben bieten sich auch andere Möglichkeiten zur Herstellung von 4-ADPA an, beispielsweise durch Kopf-Schwanz-Kupplung von Anilin, durch Decarboxylierung eines Urethans, oder durch Hydrierung von aus Nitrosobenzol bzw. aus Acetanilid und Nitrosobenzol hergestelltem p-Nitrosodiphenylhydroxylamin oder p-Nitrosodiphenylamin. Diese Methoden weisen jedoch nur geringe Ausbeuten auf und erfordern darüber hinaus kostenaufwändige Ausgangsprodukte und Hilfsmittel (vgl. EP 0 590 053 B2 S. 2 [0003] bis [0005]).

2. Ausgehend davon ist nach der Streitpatentschrift die Aufgabe des Streitpatents darin zu erkennen, ein umweltfreundliches und kostengünstiges Verfahren aufzufinden, das ohne die Verwendung von Halogenverbindungen auskommt und dabei gute Ausbeuten liefert (vgl. EP 0 590 053 B2 S. 2 [0006]).

3. Gelöst wird diese Aufgabe gemäß Patentanspruch 1 in der nach Hauptantrag verteidigten Fassung durch ein

- 1) Verfahren zur Herstellung von 4-ADPA oder von substituierten Derivaten des 4-ADPA
umfassend
- 2) die Umsetzung von Anilin oder von am Aromaten substituierten Anilinderivaten mit Nitrobenzol zu einem oder mehreren Zwischenprodukten des 4-ADPA
 - 2.1) in einem geeigneten Lösungsmittel(system)
 - 2.2) in einer begrenzten (Reaktions- bzw. Reaktor-) Zone
 - 2.3) bei einer geeigneten Temperatur

- 2.4) in Gegenwart eines Tetraalkylammoniumhydroxids oder eines alkylsubstituierten Diammoniumhydroxids als Base
- 2.5) in Gegenwart einer kontrollierten Menge protischen Materials
- 3) die Zwischenprodukte des 4-ADPA werden unter geeigneten Bedingungen zu 4-ADPA oder zu dessen substituierten Derivaten reduziert.

Gelöst wird die Aufgabe gemäß nebengeordnetem Patentanspruch 26 der nach Hauptantrag verteidigten Fassung auch durch ein

- A) Verfahren zur Herstellung alkylierter 4-Aminodiphenylamine oder deren substituiertes Derivate
 - B) mit den Merkmalen der Merkmalsgruppe 2 gemäß Patentanspruch 1
- und
- C) mit dem Merkmal 3 gemäß Patentanspruch 1, wobei
 - D) das erhaltene, ggf. substituierte 4-ADPA reaktiv alkyliert wird.

Gelöst wird die Aufgabe des Weiteren durch die tetrasubstituierten Ammoniumsalze des ggf. substituierten 4-Nitrosodiphenylamins gemäß den Patentansprüchen 55 und 56 in der gemäß Hauptantrag verteidigten Fassung, die Zwischenprodukte in den beanspruchten Verfahren darstellen (vgl. hierzu EP 0 590 053 B2, S. 17 Beisp. 19 i. V. m. S. 2 Z. 58 bis S. 3 Z. 5).

4. Als Fachmann ist ein Chemiker der Fachrichtung organische Chemie mit Erfahrung auf dem Gebiet der Nitroaromaten und Anilinderivate anzusehen, der mit der Synthese von 4-Aminodiphenylamin und dessen Derivaten befasst und vertraut ist.

III.

Die von der Klägerin auf die Nichtigkeitsgründe mangelnder Neuheit und mangelnder erfinderischer Tätigkeit sowie mangelnder Ausführbarkeit (Art. 138 Abs. 1 lit a-c EPÜ, Art. II § 6 Abs. 1 Nr. 1 bis 3 IntPatÜG) gestützte und zulässig gegen die Patentansprüche 1 bis 23, 26 bis 47, 50 und 53 bis 56 gerichtete Klage erweist sich nur teilweise als begründet, da die geltend gemachten Nichtigkeitsgründe dem Streitpatent in der gemäß Hauptantrag zulässig eingeschränkt verteidigten Fassung der angegriffenen Patentansprüche nicht entgegen stehen.

1. Die geänderte Fassung der angegriffenen Patentansprüche nach Hauptantrag ist zulässig. Sie ergibt sich aus den erteilten Patentansprüchen (EP 0 590 053 B2) sowie aus den ursprünglichen Unterlagen (WO 93/00324 A1) im Einzelnen wie folgt:

- Patentanspruch 1 aus der EP 0 590 053 B2, Patentanspruch 1 i. V. m. den die Basen Tetraalkylammoniumhydroxid und alkylsubstituiertes Diammoniumhydroxid betreffenden Merkmalen des Patentanspruchs 15, bzw. aus der WO 93/00324 A1, Anspruch 24 i. V. m. Anspruch 38,
- Patentansprüche 2 bis 9 sowie 13 bis 23 aus der EP 0 590 053 B2, Patentansprüche 2 bis 9 sowie 13 bis 23, bzw. aus der WO 93/00324 A1, Ansprüche 25 bis 32, 36 bis 46,
- Patentanspruch 26 aus der EP 0 590 053 B2, Patentanspruch 26 i. V. m. den die Basen Tetraalkylammoniumhydroxid und alkylsubstituiertes Diammoniumhydroxid betreffenden Merkmalen des Patentanspruchs 40, bzw. aus der WO 93/00324 A1, Anspruch 49 i. V. m. Anspruch 63,
- Patentansprüche 27 bis 34, 38 bis 47 sowie 50 aus der EP 0 590 053 B2, Patentansprüche 27 bis 34, 38 bis 47 sowie 50, bzw. aus der WO 93/00324 A1, Ansprüche 50 bis 57 und 61 bis 70 und S. 8 Z. 10 bis 23 i. V. m. S. 23 Beisp. 10,
- Patentansprüche 55 und 56 aus der EP 0 590 053 B2, Patentansprüche 55 und 56, bzw. aus der WO 93/00324 A1, Ansprüche 80 und 81.

Die auf Anregung des Senats in der mündlichen Verhandlung zur Klarstellung bzw. Berichtigung offensichtlicher Unrichtigkeiten in der geänderten Anspruchsfassung vorgenommenen Ergänzungen bzw. Änderungen „or aniline derivatives“ in den Patentansprüchen 1 und 26, sowie „4-aminodiphenylamines“ an Stelle von „p-phenylendiamines“ in dem Patentanspruch 26 ergeben sich unmittelbar aus dem Kontext des jeweiligen Patentanspruchs bzw. aus der Beschreibung des Streitpatents und sind deshalb ebenfalls zulässig.

2. Der Ansicht der Klägerin, das beanspruchte Verfahren sei hinsichtlich des Merkmals 2.5 „in Gegenwart einer kontrollierten Menge protischen Materials“ nicht ausreichend offenbart und deshalb diesbezüglich nicht ausführbar, kann sich der Senat nicht anschließen.

a) Unter dem Begriff „protisches Material“ versteht der Chemiker eine Substanz bzw. eine chemische Verbindung, die ein oder mehrere unter bestimmten Bedingungen ablösbare(s) Proton(en) aufweist. Zu den protischen Substanzen zählen neben Wasser, anorganischen und organischen Protonensäuren auch (Thio)Alkohole, primäre und sekundäre aliphatische sowie aromatische Amine und am Amidstickstoff unsubstituierte oder monosubstituierte Amide. Demgegenüber lassen sich an Kohlenstoff gebundene Wasserstoffatome lediglich unter ganz speziellen Bedingungen als Proton ablösen.

Patentanspruch 1 des Streitpatents umfasst als Edukt das primäre aromatische Amin Anilin und damit ohnehin ein protisches Material, das bereits aufgrund seiner Funktion als Edukt zwangsläufig in kontrollierter Menge vorliegt, so dass allein schon dadurch die Maßgabe des Merkmals 2.5 in nacharbeitbarer Weise erfüllt ist. Darüber hinaus umfasst das geeignete Lösungsmittelsystem (Merkmal 2.1) gemäß Patentanspruch 1 auch das Edukt Anilin als Lösungsmittel (vgl. EP 0 590 053 B2 Anspr. 2 und 3 i. V. m. Beschreibung [0018] Z. 9 bis 13) und damit auch insofern protisches Material in kontrollierter Menge, wobei Anilin ohnehin das einzige

protische Lösungsmittel aus der Gruppe der gemäß den Patentansprüchen 2 und 3 expressis verbis aufgeführten Lösungsmittel ist.

b) Dieser Bewertung steht nicht entgegen, dass im Streitpatent als protisches Material expressis verbis nur Wasser und Methanol benannt sind (vgl. EP 0 590 053 B2 S. 5 Z. 8 i. V. m. Anspr. 5).

Im Fall der Anwesenheit von Wasser sollen Anilin und Wasser als Azeotrop abdestilliert werden (vgl. EP 0 590 053 B2 Anspr. 23 und 47), was nichts anderes bedeutet als sowohl die Entfernung/Kontrolle des protischen Materials Wasser als auch die Entfernung/Kontrolle des protischen Materials Anilin. Selbst wenn kein Wasser anwesend ist (vgl. hierzu den diesbezüglichen Einwand der Klägerin, z. B. Schrifts. v. 18. September 2009 S. 1 ff., Punkt I.1., insbes. S. 3 Abs. 2 le. Satz; Schrifts. v. 12. Oktober 2009 S. 2 Abs. 2), wird die Umsetzung stets unter kontrollierten Mengen des protischen Materials, Edukts und Lösungsmittels Anilin durchgeführt, so dass das Merkmal 2.5 praktisch immer nacharbeitbar erfüllt ist. Im Übrigen sind die diesbezüglichen Ausführungen der Klägerin (vgl. Schriftsatz v. 18. September 2009 S. 3 Abs. 2 le. Satz) insofern zu relativieren, als „unter wasserfreien Bedingungen“ eben nicht gleichbedeutend ist mit „aprotischen Bedingungen“.

Deshalb kann auch kein Zweifel daran bestehen, dass der fachkundige Leser der Streitpatentschrift im Hinblick auf zahlreiche Ausführungsbeispiele sowie die allgemeinen Angaben in der Beschreibung ohne weiteres in der Lage ist, das streitpatentgemäße Verfahren unter bezüglich eines protischen Materials kontrollierten Bedingungen durchzuführen. Die damit diesbezüglich ohne weiteres nacharbeitbare Lehre umfasst nicht nur die Kontrolle während der chemischen Umsetzung, z. B. durch Abdestillieren des Azeotrops Anilin/Wasser (vgl. EP 0 590 053 B2 z. B. Anspr. 22 u. 23 i. V. m. [0024]), sondern auch eine Kontrolle im Sinn einer vorgegebenen Menge an protischen Materials, beispielsweise die Kontrolle des Wassergehalts durch gezielte Zugabe von Wasser als Hydratwasser der betreffenden Basensalze (vgl. EP 0 590 053 B2 z. B. Beisp. 1A: 0,28 Mol = 5 g H₂O als Hydratwasser bezogen auf insgesamt etwa 200 ml Gesamtvolumen des Reaktionsansatz-

zes, also etwa 2,5 v/v%), oder die Kontrolle der Menge an Anilin als Edukt und Lösungsmittel durch Vorgabe eines definierten, für den Reaktionsverlauf vorteilhaften Verhältnisses von Anilin zu Nitrobenzol (vgl. EP 0 590 053 B2 z. B. [0017] Z. 1 bis 3).

Gemäß Anspruch 2 des Streitpatents sind mehrere unterschiedliche Lösungsmittel zur Verwendung in dem beanspruchten Verfahren geeignet, darunter, wie vorstehend ausgeführt, auch das Edukt und protische Lösungsmittel Anilin. Gemäß der Beschreibung des Streitpatents hängt die Obergrenze des protischen Materials von dem verwendeten Lösungsmittel und von der verwendeten Base ab und ist ohne weiteres bestimmbar bzw. kontrollierbar (vgl. EP 0 590 053 B2 [0021], [0022] sowie die im Übrigen nicht angegriffenen Patentansprüche 51 und 52).

c) Im Übrigen sind die nach den Grundsätzen der „Taxol“-Entscheidung des Bundesgerichtshofs (GRUR 2001, 813 - sowie BGH GRUR 2003, 223 - Kupplungsvorrichtung II) an die Ausführbarkeit einer technischen Lehre eines erteilten Patents zu stellenden Anforderungen im Fall des Streitpatents auch nach der vorgenommenen Einschränkung auf ganz spezielle Basen aufgrund der diesbezüglich verbleibenden zahlreichen Ausführungsbeispiele erfüllt, weil es danach für eine hinreichende Ausführbarkeit nicht erforderlich ist, dass alle denkbaren unter den Wortlaut des Patentanspruches fallenden Ausgestaltungen ausgeführt werden können, sondern ausreicht, dass ein gangbarer Weg offenbart ist. Außerdem ist bezüglich des Merkmals 2.5, aber auch insgesamt, eine unangemessene Anspruchsbreite nicht festzustellen.

3. Die Neuheit der Verfahren gemäß Patentansprüchen 1 und 26 sowie der Zwischenprodukte gemäß Patentansprüchen 55 und 56 (Art. 54 EPÜ), jeweils in der nach Hauptantrag nunmehr eingeschränkt verteidigten Fassung, wird durch den Inhalt der im Verfahren befindlichen Druckschriften nicht in Frage gestellt und ist deshalb anzuerkennen. Denn aus den vorgebrachten Druckschriften geht ein Verfahren zur Herstellung von gegebenenfalls substituiertem 4-Aminodiphenylamin aus Anilin oder Anilinderivaten und Nitrobenzol in Gegenwart eines Tetraal-

kylammoniumhydroxids oder eines alkylsubstituierten Diammoniumhydroxids als Base (Merkmal 2.4) nicht hervor (Patentanspruch 1). Entsprechendes gilt für ein Verfahren zur Herstellung alkylierter gegebenenfalls substituierter 4-Aminodiphenylamine in Gegenwart eines Tetraalkylammoniumhydroxids oder eines alkylsubstituierten Diammoniumhydroxids als Base (Patentanspruch 26) sowie für tetrasubstituierte Ammoniumsalze von gegebenenfalls substituierten 4-Nitrosodiphenylaminen (Patentansprüche 55 und 56).

Soweit die Klägerin ursprünglich fehlende Neuheit gegenüber dem Inhalt der NK3 oder der NK4 geltend macht (vgl. Schrifts v. 22. Februar 2007 S. 34 ff.) und zwar insofern, als gegenüber der Lehre der NK3 oder NK4 lediglich ein, im Streitpatent selbst als trivial bezeichneter Reduktions(Hydrier)schritt (Merkmal 3) hinzukomme, den der Fachmann in NK3 und NK4 mitlese (vgl. Schrifts. v. 22. Februar 2007 S. 34 le. Abs), so greift dieser Einwand nicht. Weder die NK3 noch die NK4 lehrt ein Verfahren zur Herstellung von 4-ADPA, sondern lediglich ein Verfahren zur Durchführung der ersten Verfahrensstufe und damit zur Herstellung von 4-Nitro- bzw. 4-Nitrosodiphenylamin hervor. Ein Mitlesen des fehlenden Reduktionsschritts (Merkmal 3) und damit eine neuheitsschädliche Vorwegnahme scheidet jedoch unabhängig von der Frage der Trivialität dieses fehlenden Reaktionsschrittes aus.

Im Hinblick auf die gemäß Hauptantrag nunmehr vorgenommene Einschränkung auf spezielle Basen (Merkmal 2.4) geht der Neuheitseinwand der Klägerin jedoch ohnehin ins Leere.

4. Die gemäß Hauptantrag beanspruchten Verfahren und Zwischenprodukte beruhen auch auf einer erfinderischen Tätigkeit (Art. 56 EPÜ).

Bei der Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit des Verfahren gemäß Patentanspruch 1 ist von der Aufgabe auszugehen, die ausgehend von dem in der Beschreibungseinleitung des Streitpatents zitierten Stand der Technik darin bestanden hat, ein umweltfreundliches und kostengünstiges Verfahren zur Herstellung von 4-ADPA aufzufinden, das nicht p-Chlornitrobenzol als Edukt vorsieht,

damit ohne die Verwendung und Produktion umweltschädlicher Halogenverbindungen auskommt und darüber hinaus vor allem gute Ausbeuten liefert (vgl. EP 0 590 053 B2 S. 2 [0006]).

a. Als Ausgangspunkt für die Erfindung des Streitpatents sind entweder die NK3 oder die NK4 anzusehen, die die Herstellung von 4-Nitroso- oder 4-Nitrodiphenylamin bzw. von deren am Aromaten substituierten Derivaten ausgehend von Anilin und Nitrobenzol und damit die Herstellung der Vorstufen des 4-Aminodiphenylamin beschreiben und dabei jedenfalls die Merkmale 1 bis 2.3 sowie 2.5 aufweisen, während die übrigen Druckschriften die Herstellung anderer Verbindungen betreffen; so dass der angesprochene Fachmann in dem Bemühen eine bessere Lösung zu finden seinen Fokus ohne weiteres zunächst auf diese Druckschriften richtete (vgl. BGH GRUR 2009, 1039 - Fischbissanzeiger, GRUR 2009, 382 - Olanzipin). Das Merkmal 2.5 ist dabei zwangsläufig erfüllt, da mit dem protischen Edukt Anilin stets eine kontrollierte Menge an protischen Material anwesend ist.

Im Einzelnen wird gemäß der Lehre der NK3 durch Umsetzung von 30 g Anilin (etwa 0,32 Mol) mit 30 g Nitrobenzol (etwa 0,24 Mol) in Gegenwart eines hohen Überschusses von nahezu wasserfreier NaOH etwa 1,6 g 4-Nitrosodiphenylamin (etwa 0,01 Mol) erhalten, was einer Ausbeute von etwa 4 % entspricht (vgl. NK3 S. 4136 le. Abs. bis S. 4137 Mitte). Auch die analoge Umsetzung von α -Naphthylamin und Nitrobenzol zu p-Nitrosophenyl-naphthylamin in Gegenwart eines hohen Überschusses von Natronhydrat und damit in Gegenwart einer beträchtlichen Menge an Hydratwasser führt nur zu sehr geringen Ausbeuten (vgl. NK3 S. 4138). Zwar hätte der Fachmann davon ausgehend - unter Festhalten an den vorgegebenen Edukten und Basen - zwanglos und ohne weiteres optimierende Versuche zur Ausbeuteverbesserung angestellt. Zur Untersuchung anderer basischer Verbindungen, insbesondere von Tetraalkylammoniumhydroxiden oder von alkylsubstituierten Diammoniumhydroxiden (Merkmal 2.4), bestand für ihn jedoch kein Anlass, zumal in der NK3 ein Wechsel der Base (von NaOH zu Natronhydrat) keinerlei Verbesserungen erkennen lässt.

Entsprechendes gilt für die NK3a, in der die Herstellung von 4-Nitrosodiphenylamin nach der Vorschrift der NK3 beschrieben ist, wobei allerdings keine Angaben zur Ausbeute gemacht werden.

In der NK4, die ausweislich ihres Titels die Reaktion von Arylmethylaminen mit dem Superoxidanion-Radikal in aprotischen Medien betrifft, wird unter anderem auch die Umsetzung von Anilin mit Nitrobenzol in Gegenwart von Kalium-tert.-Butoxid als Base in Gegenwart eines Kronenethers in Benzol als aprotischem Lösungsmittel beschrieben. Dabei wird nach etwa 85%-iger Umsetzung 4-Nitrodiphenylamin in 20 GRUR 2009, 382 - Olanzipin: 24 % Ausbeute erhalten (vgl. NK4 S. 1704 Table 2 le. Zeile i. V. m. den in Table 1 angegebenen Bedingungen i. V. m. S. 1704 li. Sp. Zn. 3 bis 9). Im Hinblick auf diese mäßige Ausbeute sowie die aufwändigen Reaktionsbedingungen (Wasserfreiheit, t-Butoxid, Kronenether) bestand nach Ansicht des Senats für den Fachmann weder Anlass dazu, diese Umsetzung ernsthaft als Vorbild für die erste Stufe bei der Herstellung von 4-Aminodiphenylamin in Betracht zu ziehen, noch anstelle von t-Butoxid andere Basen einzusetzen, erst recht nicht Tetraalkylammoniumhydroxide oder alkylsubstituierte Diammoniumhydroxide (Merkmal 2.4).

b. Der Senat kann auch nicht feststellen, dass die NK5, die ausgehend von Acetanilid und Nitrobenzol mit NaOH als Base 4-Nitroso- und 4-Nitrodiphenylamin in insgesamt etwa 7 % Ausbeute ergibt, oder die NK21, die ausgehend von p-Chlornitrobenzol und Anilin mit K_2CO_3 als Base und Kupferiodid als Katalysator etwa 73 % 4-Nitrodiphenylamin ergibt, das Interesse des mit der Herstellung von 4-Nitroso- bzw. 4-Nitrodiphenylamin sowie von 4-Aminodiphenylamin befassten Fachmanns an dem Einsatz anderer Basen hätten wecken können. Denn diese Druckschriften gehen nicht von Anilin und Nitrobenzol als Eduktpaar aus. Hinzu kommt, dass in der NK5 bzw. in der NK21 die Verwendung von Acetanilid und von p-Chlornitrobenzol als Edukte mit einem zusätzlichen Synthesaufwand für diese Edukte verbunden ist, wobei im Fall des p-Chlornitrobenzols außerdem die bereits angesprochene Korrosivität aufgrund des entstehenden Chlorids entgegensteht.

c. Maßgeblich für die anzuerkennende Patentfähigkeit des streitpatentgemäßen Verfahrens in der nunmehr eingeschränkten Fassung ist vielmehr, dass weder aus der NK3 oder der NK4, die von den gleichen Edukten wie das streitpatentgemäße Verfahren ausgehen, noch aus der NK5 und der NK21 oder aus der Zusammenschau dieser Druckschriften sich irgendwelche Anhaltspunkte ergeben, die den fachkundigen Leser hätten veranlassen können, Tetraalkylammoniumhydroxide oder alkylsubstituierte Diammoniumhydroxide als Basen in einem Verfahren zur Herstellung von 4-Aminodiphenylamin oder von dessen substituierten Derivaten einzusetzen.

Die Verwendung eines Kronenethers zusammen mit t-Butoxid als Base in der NK4 gibt dem Fachmann weder eine Anregung noch einen konkreten Hinweis zur Möglichkeit des Einsatzes von Tetraalkylammoniumhydroxiden oder von alkylierten Diammoniumhydroxiden, die zusammen mit ihrer Basenfunktion gleichsam auch die Funktion des Phasentransfer erfüllen.

Vielmehr handelt es sich bei dem nunmehr eingeschränkt verteidigten Verfahren um eine nicht nahegelegte, elegante Variante auf dem Weg zur Herstellung von 4-ADPA, die zudem sehr hohe Ausbeuten liefert.

d. Eine Anregung zum Einsatz von Tetraalkylammoniumhydroxid ergibt sich auch nicht aus den übrigen seitens der Klägerin vorgebrachten Druckschriften, auch nicht in deren Zusammenschau mit den Inhalten der NK3, NK4, NK5 und NK21.

Die NK18 betrifft die Bildung von Azobenzolen durch basenkatalysierte Umsetzung von Anilin und Nitrosobenzol und zwar durch Abstraktion eines Protons von Anilin in Gegenwart von Tetramethylammoniumhydroxid und nukleophilen Angriffs des Anilid-Anions am Stickstoff des Nitrosobenzols. Der Senat sieht keinen Grund, weshalb der Fachmann diese Druckschrift für die Herstellung von 4-Aminodiphenylamin bzw. der Zwischenstufen 4-Nitroso- und 4-Nitrodiphenylamin heranziehen sollte, zumal er die Bildung von Azobenzolen vermeiden bzw. minimieren will (vgl. hierzu EP 0 590 053 B2 S. 4 [0017], [0020]). Der Fachmann wird deshalb daraus

gerade nicht auf die vorteilhafte Möglichkeit des Einsatzes von Tetramethylammoniumhydroxid als Base bei der Umsetzung von Anilin und Nitrobenzol zu 4-Nitroso- und 4-Nitrodiphenylamin und einem nucleophilen Angriff des Anilid-Anions am Ring-Kohlenstoff des Nitrobenzols schließen, auch nicht in Zusammenchau mit den vorstehend abgehandelten Druckschriften.

Die NK 6 betrifft die Hammett-Funktion von stark-basischen Systemen, hier des Systems DMSO-Wasser-Tetramethylammoniumhydroxid, wobei die Säurefunktion unter anderem auch von substituierten Diphenylaminen, darunter 4-Aminodiphenylamin und 4-Nitrodiphenylamin, untersucht wurde. Dabei bilden sich Salze zwischen Tetramethylammoniumhydroxid und den Diphenylaminen durch Abstraktion eines Protons von der sekundären Aminogruppe (vgl. S. 922 li. Sp. unten i. V. m. S. 914 Table II Verbindung Nr. 4). Dadurch ist zwar das gemäß Streitpatent in der erteilten Fassung unter Schutz gestellte Tetramethylammonium-Salz des 4-Nitrodiphenylamins bereits durch die Lehre der NK6 neuheitsschädlich vorweggenommen, einem Umstand, dem die Beklagte in der mündlichen Verhandlung auch durch entsprechenden Verzicht auf die auf 4-Nitrodiphenylamin-Salze im geänderten Hauptantrag Rechnung getragen hat.

Die Lehre der NK6 gibt nach Ansicht des Senats insbesondere auch nicht einen Hinweis oder einen Anhaltspunkt dahin, dass die Herstellung von 4-Nitro- oder von 4-Nitroso-diphenylamin aus Anilin und Nitrobenzol in Gegenwart des Systems DMSO-Wasser-Tetramethylammoniumhydroxid begünstigt ablaufen könnte.

Denn die Lehre der NK6 erstreckt sich allein auf die Wirkung des betreffenden Basensystems auf das fertige (Zwischen)Produkt 4-NDPA. Eine weitergehende Anregung ist aus der NK6 nicht zu entnehmen.

Deshalb scheidet auch eine Kombination der NK6 mit den Druckschriften NK3 oder NK4 aus, selbst wenn in der NK4, ebenso wie in der NK6, mit DMSO als Lösungsmittel gearbeitet würde.

Bei der NK7 handelt es sich um einen Auszug aus dem Fluka-Katalog zu wasserfreiem DMSO, bei der NK19 um einen Auszug aus dem Aldrich-Katalog, während die NK8 den Einsatz von Trockenmitteln allgemein betrifft und die NK20 sich mit

dem Scale-up in der chemischen Verfahrensentwicklung befasst, so dass auch diese Druckschriften die Patentfähigkeit des beanspruchten Verfahrens nicht in Frage stellen können.

Der Auszug aus der bekannten Monographie „Reaktionsmechanismen in der organischen Chemie“ NK15 betrifft die Grundzüge der nucleophilen aromatischen Substitution, der Auszug aus dem Lehrbuch NK16 die nukleophile aromatische Substitution nach dem Additions-Eliminations-Mechanismus, hauptsächlich mit Blick auf Halogen als Austrittsgruppe, einschließlich eines allgemeinen Hinweises auf Kronenether und Phasentransfer-Katalysatoren zur Beschleunigung der Reaktionsgeschwindigkeit sowie Ausführungen zur Deprotonierung als geschwindigkeitsbestimmenden Schritt. Der Senat kann nicht feststellen, dass der Fachmann ausgehend von dem Inhalt der NK3 bis NK6 unter Berücksichtigung der NK15 und NK16 ohne weiteres zum streitpatentgemäßen Verfahren in der nunmehr verteidigten Fassung gelangen konnte. Entsprechendes gilt für die NK17, aus der auszugsweise auf Anionentransfer-Katalysatoren, darunter Kronenether und quaternäre Ammoniumsalze hingewiesen wird.

Bei NK9, NK12, NK13a, NK14 handelt es sich um parallele US-Schriften zum Streitpatent bzw. EP-Verfahren, bei NK10 bis NK11 um Druckschriften, die im parallelen US-Verfahren zitiert sind. Sie vermögen den Bestand des Streitpatents in der nun gemäß Hauptantrag eingeschränkten Fassung nicht in Frage zu stellen.

Auch in den zahlreichen seitens der Beklagten angezogenen Druckschriften (vgl. KW4 bis KW33) kann der Senat nichts erkennen, was den Fachmann hätte zum Einsatz von Tetralkylammoniumhydroxiden als Basen im Zuge der Umsetzung von Anilin und Nitrobenzol hinführen können. Diese Druckschriften betreffen im Wesentlichen die Anwendung des Verfahrens gemäß NK3 in der Heterocyclensynthese, insbesondere zur Phenazinsynthese, jedoch (eher) nicht zur Herstellung von 4-Nitro(so)-Diphenylamin oder im Zuge der Herstellung von 4-Aminodiphenylamin. Es finden sich dort insbesondere keinerlei Hinweise auf Tetraalkylammoniumsalze oder ähnliche Verbindungen.

e. Schließlich kann dem nunmehr eingeschränkten Gegenstand des Streitpatents allein aus dem Wissen und Können des Fachmanns die erfinderische Tätigkeit nicht abgesprochen werden, jedenfalls nicht schon deshalb, weil dem Fachmann Tetraalkylammoniumhydroxiden oder alkylsubstituierten Diammoniumhydroxide als Basen grundsätzlich bekannt sind. Der Ansicht der Klägerin, dass sich der Einsatz von Tetraalkylammoniumhydroxiden oder alkylsubstituierte Diammoniumhydroxiden anstelle von NaOH oder anderen im Zusammenhang mit der Synthese von 4-Aminodiphenylamin eingesetzten Basen per se anbiete, kann der Senat nicht beitreten.

f. Der Senat kann auch nicht feststellen, dass es sich bei den Tetraalkylammoniumhydroxiden oder alkylsubstituierten Diammoniumhydroxiden - wie die Klägerin in der mündlichen Verhandlung vorgetragen hat - um eine willkürliche Auswahl von Basen handle, mit der kein besonderer technischer Effekt verbunden sei. Im Hinblick auf die Unteransprüche 15 und 40 sowie die dementsprechenden Ausführungsbeispiele 1 bis 4, 6 bis 10, 12 bis 18 des Streitpatents geht zweifelsfrei die besonders bevorzugte Eignung dieser Basen hervor. Der Patentfähigkeit dieser eingeschränkt verteidigten Fassung des Patentanspruchs 1 steht nicht entgegen steht, dass zum Einen einzelne, nicht mehr vom Anspruch umfasste Arylammoniumbasen oder für KOH plus Kronenether ebenfalls eine gute Ausbeute und Selektivität zeigen (vgl. EP 0 590 053 B2 Beisp. 14 und 16) und zum Anderen auch für die anspruchsgemäßen Tetraalkylammoniumhydroxiden oder alkylsubstituierten Diammoniumhydroxiden Reaktionsbedingungen existieren, unter denen vorteilhafte Ergebnisse nicht erzielbar sind, beispielsweise bei zusätzlich zu dem Hydratwasser der Base zugesetztem Wasser (vgl. EP 0 590 053 B2 Beisp. 3). Was die Ausführungsform des Beispiels 14 des Streitpatents mit KOH als Base und Kronenether als Phasentransfermittel anbelangt, so geht eine solche Kombination aus dem Stand der Technik nicht hervor. In der NK4 wird lediglich eine Kombination von t-Butoxid und Kronenether gewählt, allerdings bei einer mäßigen Ausbeute von nur etwa 24 % bei 85 % Umsetzung (vgl. NK4 Tabelle 2 i. V. m. Fußnote der Tabelle 1 i. V. m. S. 1704 li. Spalte Zn. 3 bis 9). Die demgegenüber gemäß Streitpatent mit Kronenether und KOH (nicht zu verwechseln mit dem Kali-

umperoxid KO_2 der Tabelle 2 in NK4) erzielten guten Ergebnisse (vgl. EP 0 590 053 B2 S. 12 bis 13, insbes. Tabelle 8 vorle. Zeile) sind nicht dem Stand der Technik zuzurechnen und können deshalb die Patentfähigkeit des Streitpatents in der verteidigten Fassung nicht in Frage zu stellen. Eine Anregung oder ein Hinweis zum Einsatz von Tetraalkylammoniumhydroxiden oder alkylsubstituierten Diammoniumhydroxiden und damit von Verbindungen, die die Basen- und Phasentransferfunktion in sich vereinen, ist daraus ohnehin nicht zu entnehmen.

Darüber hinaus hat die Beklagte auf Nachfrage des Berichterstatters in der mündlichen Verhandlung anhand einer überreichten Tabelle fehlende Versuchsergebnisse zum Beispiel 5 der Streitpatentschrift vorgelegt. Aus dieser Tabelle ergibt sich mit verschiedenen Basen des Standes der Technik nach einer Reaktionszeit, nach der mit Tetramethylammoniumhydroxid-Dihydrat als Base vergleichsweise bereits etwa 80 % des Nitrobenzols bei etwa 95 % Selektivität umgesetzt wurden, eine äußerst geringe Umsetzung, mit NaOH lediglich 7,2 %, bei zudem deutlich herabgesetzter Selektivität und damit sogar ein von der Klägerin in Abrede gestellter technischer Effekt.

3. Entsprechendes gilt für das Verfahren zur Herstellung von alkylierten 4-Aminodiphenylaminen oder von deren substituierten Derivaten, bei dem zunächst die beiden Umsetzungsstufen gemäß Patentanspruch 1 zu 4-Aminodiphenylamin oder zu dessen substituierten Derivaten (Merkmale 2 bzw. B sowie 3 bzw. C) und als dritte Stufe demgegenüber zusätzlich eine reduktive Alkylierung (Merkmal D) durchgeführt wird, sodass auch Patentanspruch 26 Bestand hat.

4. Was die tetrasubstituierten Ammoniumsalze gemäß den Patentansprüchen 55 und 56 anbelangt, so stellen diese Zwischenprodukte in den Verfahren gemäß Patentansprüchen 1 und 26 dar. Die mit ihrer Bereitstellung verbundene erfinderische Tätigkeit gründet sich auf die anzuerkennende Patentfähigkeit der Verfahren gemäß den Patentansprüchen 1 und 26, in die sie als Zwischenprodukte eingebunden sind (vgl hierzu z. B. Benkard PatG 10. Aufl. § 4 Rdn. 90, 91), so dass auch die Patentansprüche 55 und 56 Bestand haben.

III.

Bei dieser Sachlage bestand auch im Hinblick auf die ausführliche Erörterung der Sach- und Rechtslage im Verhandlungstermin kein Anlass, dem mit Schriftsatz vom 20. Oktober 2009 gestellten und mit Schriftsatz vom 11. November 2009 wiederholten Antrag der Klägerin auf Wiedereröffnung und Fortsetzung der mündlichen Verhandlung stattzugeben, § 91 Abs. 3 S. 2 PatG i. V. m. § 156 Abs. 2 ZPO. Nachdem die Beklagte das patentgemäße Verfahren bereits mit Schriftsatz vom 6. Oktober 2009, dem Klägervertreter zugestellt am 12. Oktober 2009, und damit vor dem Verhandlungstermin hilfsweise auf die bevorzugte Ausführungsform in Gegenwart der speziellen Basen der Patentansprüche 15 und 40 eingeschränkt hat (vgl. Schrifts. v. 6. Oktober 2009 S. 1 le. Abs i. V. m. dem damaligen Hilfsantrag 1), war eine Vertagung oder die Gewährung eines Schriftsatznachlasses nach § 283 ZPO - welche auch nicht beantragt worden sind - nicht veranlasst, zumal die aufgrund des Schriftsatzes vom 6. Oktober 2009 hilfsweise sowie in der mündlichen Verhandlung gemäß Hauptantrag verteidigte Fassung und die betreffenden einschränkenden Merkmale bereits Gegenstand der Patentansprüche 15 und 40 der erteilten Fassung waren. Diese waren auch im Hinblick auf die auf diesbezügliche Zwischenprodukte gerichteten Sachansprüche 53 bis 58 ohne weiteres als besonders bevorzugte Ausführungsformen erkennbar, wobei die Klägerin mit Schriftsätzen vom 22. Februar 2007 (vgl. a. a. O. S. 40 Punkt 4.11, S. 52 Punkt 4.34, S. 58 bis 60 Punkte 4.46 bis 4.49,) und vom 18. September 2009 (vgl. a. a. O. z. B. S. 44) bereits zu dem Inhalt dieser Patentansprüche Stellung genommen hatte, so dass angesichts der zusätzlichen mündlichen ausführlichen Erörterung sämtlicher Sach- und Rechtsfragen für die Klägerin ausreichende Gelegenheit zur Stellungnahme bestand.

IV.

Die Kostenentscheidung beruht auf § 84 Abs. 2 Satz 2 1. Halbs. PatG i. V. m. § 91 Abs. 1 ZPO, die Entscheidung über die vorläufige Vollstreckbarkeit auf § 99 Abs. 1 PatG i. V. m. § 709 Satz 1 und Satz 2 ZPO.

Dr. Schermer
ist durch Ur-
laub an der
Unterschrift
gehindert.

Engels

Dr. Egerer

Zettler ist durch
Urlaub an der
Unterschrift
gehindert.

Dr. Lange

Engels

Pr