

A		B	X	C	
---	--	---	---	---	--

Aktenzeichen: T 194/90 - 3.3.1

Anmeldenummer: 83 101 625.8

Veröffentlichungs-Nr.: 0 088 275

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von Trimethylolpropan

Klassifikation: C07C 29/38

E N T S C H E I D U N G

vom 27. November 1992

Anmelder: BAYER AG

Einsprechender: Perstorp AB

Stichwort: Trimethylolpropan/BAYER

EPÜ Artikel 56, Regel 64

Schlagwort: "Umfang der Beschwerde (Nr. 1.2)" - "Zurücknahme des Einspruchs im Beschwerdeverfahren (1.1)" - "Erfinderische Tätigkeit (ja) - nicht naheliegende Alternative (3.4, 3.5)"



Aktenzeichen: T 194/90 - 3.3.1

ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 27. November 1992

Beschwerdeführer:
(Patentinhaber)

BAYER AG
W - 5090 Leverkusen 1 (DE)

Angefochtene Entscheidung:

Entscheidung der Einspruchsabteilung des
Europäischen Patentamts vom 25. Juli 1989, zur
Post gegeben am 2. März 1990, mit der das
europäische Patent Nr. 0 088 275 aufgrund des
Artikels 102 (1) EPÜ widerrufen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn
Mitglieder: P. Krasa
I.C. Saisset

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die europäische Patentanmeldung 83 101 625.8 wurde das europäische Patent 88 275 mit dem folgenden einzigen Anspruch erteilt:

"Verfahren zur Herstellung von Trimethylolpropan durch Umsetzung von n-Butyraldehyd mit wäßrigem Formaldehyd in Gegenwart von alkalischen Kondensationsmitteln, wobei man den n-Butyraldehyd bei Temperaturen von 15 bis 50°C in ein Gemisch aus Wasser, alkalischen Kondensationsmitteln und Formaldehyd eindosiert und nach Zugabe des Butyraldehyds das Reaktionsgemisch auf bis zu 90°C erwärmt, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung mit einem Formaldehyd durchführt, der 0,1 bis 0,001 Mol Methanol, bezogen auf 1 Mol Formaldehyd enthält, und daß in dem Reaktionsgemisch so viel Wasser zugegen ist, daß nach der Reaktion das Reaktionsgemisch einen Gehalt an Trimethylolpropan von 5 bis 10 Gew.-% aufweist."

- II. In einem frist- und formgerecht gegen die Patenterteilung eingelegten Einspruch wurde der Widerruf des Patents beantragt, da dessen Gegenstand weder neu, noch erfinderisch sei. Im Laufe des Einspruchsverfahrens wurde der Einwand mangelnder Neuheit fallengelassen. Der Einspruch war u. a. auf folgende Druckschriften gestützt:

- (1) US-A-3 076 854 (1963)
- (2) US-A-2 170 624 (1939)
- (3) US-A-3 183 274 (1965).

Während des Einspruchsverfahrens wurden u. a. noch folgende Dokumente angezogen:

- (8) DD-A-134 514 (1979)
- (11) Acta Chem. Scand. B 28 (1974), S. 325 - 332.

III. Die Einspruchsabteilung hat das Streitpatent durch die Entscheidung vom 25. Juli 1989 widerrufen, da es nicht auf erfinderischer Tätigkeit beruhe. In der am 2. März 1990 zur Post gegebenen Begründung führte sie aus, daß die nach dem Streitpatent erzielbare Ausbeute von 94,5 % bei der Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit unberücksichtigt bleiben müsse, da sich diese Angabe, im Gegensatz zur Ausbeute von 90 % nach der Entgegenhaltung (3), nicht auf in Substanz isoliertes TMP beziehe und bei der Isolierung des TMP aus dem wäßrigen Reaktionsmedium mit Verlusten zu rechnen sei.

Des weiteren sei die Verwendung von methanolarmen Formaldehyd für die Herstellung von TMP naheliegend gewesen, da aus Dokument (2) die Nachteile der Anwesenheit von Methanol bei der Umsetzung von Acetaldehyd mit Formaldehyd zu Pentaerythrit, einer in Hinblick auf Dokument (11) zum beanspruchten Verfahren analogen Reaktion, bereits bekannt waren. Außerdem lehre auch Dokument (1) die Verwendung von methanolfreiem Formaldehyd zur Herstellung von TMP; die dort beschriebene, relativ niedrige Ausbeute sei ohne weiteres durch die übrigen, ungünstigen Reaktionsbedingungen zu erklären. Schließlich sei methanolarmer Formaldehyd als Handelsprodukt zur Verfügung gestanden.

IV. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin (Patentinhaberin) am 15. März 1990 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde eingelegt. Diese wurde am 29. Juni 1990 begründet. Sie hat im wesentlichen ausgeführt, Dokument (3) enthalte keinerlei Information über den Methanolgehalt des eingesetzten Formaldehyds. Methanolarmer Formaldehyd sei, wie von der Einspruchsabteilung nicht berücksichtigte Dokumente belegten, zum Zeitpunkt der Konzipierung von Entgegenhaltung (3) kein Handelsprodukt gewesen.

Diese Ansicht werde durch Druckschrift (1) gestützt, die nur etwa ein Jahr vor Dokument (3) konzipiert worden sei. Dort werde methanolfreier Formaldehyd ausdrücklich genannt, weil dessen Verwendung offensichtlich damals weder selbstverständlich noch naheliegend gewesen sei.

Des weiteren sei das Verfahren zur Herstellung von TMP alt und intensiv zwecks Ausbeuteverbesserung bearbeitet worden. Nach dem Verfahren des Streitpatents werde, bereits von einem hohen Niveau ausgehend, eine weitere Ausbeuteverbesserung erreicht. In der Entscheidung T 38/84, "Toluoloxidation", sei auch die Erzielung einer kleinen Ausbeutesteigerung als lohnende technische Aufgabe bei einem großtechnischen Verfahren anerkannt worden. Dies habe auch im vorliegenden Fall zu gelten. Bei Anwendung des in Dokument (3) beschriebenen speziellen Extraktionsverfahrens, bei dem offenbar eine im wesentlichen vollständige Isolierung des gebildeten TMP gelinge, auf das Verfahren nach dem Streitpatent, sollte auch das nach Beispiel 1 in einer Ausbeute von 94,5 % der Theorie gebildete TMP weitgehend isolierbar sein. Nach Auffassung der Beschwerdeführerin lasse auch der in Druckschrift (3) genannte niedrige Siedepunkt des destillativ gewonnenen TMP darauf schließen, daß dort ein Azeotrop und dementsprechend auch eine entsprechend niedrigere Ausbeute an TMP erhalten worden sei.

Die Verwendung von methanolfreiem Formaldehyd in Entgeghaltung (1) konnte nach Ansicht der Beschwerdeführerin dem Fachmann keinen Hinweis auf die jetzt vorgeschlagene Lösung geben, da damit die störungsfreie extraktive Aufarbeitung eines TMP enthaltenden Reaktionsgemisches, nicht aber eine Steigerung der Reaktionsausbeute angestrebt worden sei.

Die Beschwerdeführerin bestreitet die Vergleichbarkeit von n-Butyraldehyd und Acetaldehyd bei der Herstellung von TMP einerseits und Pentaerythrit andererseits. Sie verweist auf Dokument (11), in dem, abgesehen von einer formalen Übereinstimmung der beiden Reaktionsschemata, für Acetaldehyd und die von diesem abgeleiteten Zwischenstufen eine höhere Reaktivität in dieser Reaktion als für n-Butyraldehyd und die von ihm abgeleiteten Zwischenstufen beschrieben werde.

- V. Die Beschwerdeführerin hat in der Beschwerdebegründung den Antrag gestellt, die Entscheidung der Einspruchsabteilung aufzuheben und das Patent unverändert aufrechtzuerhalten.

Die Beschwerdegegnerin (Einsprechende) hat sich sachlich nicht geäußert, sondern mit ihrer Eingabe vom 20. Dezember 1990 den Einspruch zurückgenommen.

Entscheidungsgründe

1. Zulässigkeit der Beschwerde

Der Beschwerdeschriftsatz enthält keinen förmlichen Antrag hinsichtlich des Umfangs, in dem die angefochtene Entscheidung geändert oder aufgehoben werden soll. Diese Kammer hat, in anderer Besetzung, bereits in zwei Fällen, in denen Einsprechende als Beschwerdeführer ihre Beschwerden ohne solchen förmlichen Antrag eingereicht haben, entschieden, daß dann der objektive Erklärungswert der Beschwerdeschrift ermittelt werden muß (T 1/88 vom 26. Januar 1989, Nr. 1.1.2 der Entscheidungsgründe und T 85/88 vom 31. August 1989, Nr. 1 der Entscheidungsgründe; beide nicht im Amtsblatt des EPA veröffentlicht). Dieser Grundsatz gilt nach Auffassung der Kammer auch dann, wenn der Beschwerdeführer der Patentinhaber ist, da

dieser andernfalls in ungerechtfertigter Weise benachteiligt würde.

Wenn die Beschwerdeführerin nun gegen die Entscheidung der Einspruchsabteilung das Patent zu widerrufen, ohne förmliche Antragstellung hinsichtlich des Umfangs ihres Begehrens, Beschwerde erhebt, so ist dies nach Auffassung der Kammer als unverändertes Festhalten an dem in der Einspruchserwiderung vom 28. Januar 1987 gestellten Antrag auszulegen, den Einspruch zurückzuweisen.

Da auch alle anderen Vorschriften der Artikel 106 bis 108 und der Regel 64 erfüllt sind, ist die Beschwerde zulässig.

2. Entscheidung über die Beschwerde

Die gegen die Entscheidung der Einspruchsabteilung gerichtete Beschwerde, wird von der Erklärung der Zurücknahme des Einspruchs nicht berührt, wenn die Einspruchsabteilung das Patent widerrufen hat (vgl. T 629/90 vom 4. April 1991, Nr. 2.2 der Entscheidungsgründe; Amtsblatt des EPA 1992, 654). Die Kammer muß daher über die anhängige Beschwerde entscheiden und demzufolge prüfen, ob das europäische Patent den Erfordernissen des EPÜ entspricht.

3. Neuheit

Die Neuheit des Patentgegenstandes wurde in der angefochtenen Entscheidung anerkannt. Die Kammer schließt sich dieser Beurteilung an.

4. Erfinderische Tätigkeit

4.1 Gegenstand des Anspruchs des Streitpatents ist ein Verfahren zur Herstellung von TMP durch Umsetzen von n-Butyraldehyd mit Formaldehyd in Gegenwart eines alkalischen Kondensationsmittels mit folgenden Merkmalen:

- i) n-Butyraldehyd wird in ein Gemisch aus Wasser, alkalischem Kondensationsmittel und Formaldehyd eidosiert;
- ii) die Eidosierung erfolgt bei 15 - 50°C;
- iii) der Formaldehyd enthält 0,001 - 0,1 Mol Methanol pro Mol Formaldehyd;
- iv) nach Zugabe des n-Butyraldehyds wird das Reaktionsgemisch auf bis zu 90°C erwärmt;
- v) der Gehalt an TMP im Reaktionsgemisch beträgt nach Beendigung der Reaktion 5 - 10 Gew.-%.

4.2 Verfahren zur Herstellung von TMP sind aus den Druckschriften (1), (3) und (8) bekannt. In Dokument (11) wird über die bei basenkatalysierten Aldolkondensationen, u. a. auch bei der TMP-Bildung auftretenden Zwischenprodukte und Reaktivitäten berichtet.

Bei dem in Dokument (3) beschriebenen Verfahren, das die Kammer - übereinstimmend mit der Vorinstanz - als nächsten Stand der Technik wertet, werden vorteilhafterweise Formaldehyd, n-Butyraldehyd und Natriumhydroxid kontinuierlich in wäßriger Phase vermischt und zur Reaktion gebracht (Spalte 2, Zeilen 11 bis 40). Die

Reaktanten können jeder für sich in die Mischzone eingebracht oder die Aldehyde auch vorgemischt werden (Spalte 2, Zeilen 28 bis 31). Angaben zum Methanolgehalt des eingesetzten Formaldehyds finden sich in Entgegnung (3) nicht. Die einzige Angabe zur erzielbaren Ausbeute findet sich in Beispiel 1. Nach extraktiver Aufarbeitung des Reaktionsgemisches und Entfernung des Extraktionsmittels durch Wasserdampfdestillation läßt sich TMP vom Siedepunkt 142°C/3 mm Hg in einer Ausbeute von 90 % der Theorie, bezogen auf n-Butyraldehyd, gewinnen (Spalte 4, Zeile 60 bis Spalte 5, Zeile 41).

- 4.3 Die Einspruchsabteilung hat es abgelehnt, die nach dem Streitpatent erzielte Ausbeute von 94,5 % an nicht isoliertem TMP gegenüber der nach Dokument (3) erreichbaren Ausbeute von 90 % an isoliertem TMP als Verbesserung anzusehen. Zur Begründung hat sie sich auf die Dokumente (1) und (3) berufen. Dort wird ausgeführt, daß die Abtrennung des TMP vom (gebildeten) Natriumformiat wegen der Wasserlöslichkeit des TMP schwierig sei, und daß die Isolierung des TMP aus wäßriger Phase ein ernstes Problem darstelle (Dokument (3), Spalte 1, Zeilen 29 bis 33; Dokument (1), Spalte 1, Zeilen 42 und 43).

Dem ist entgegenzuhalten, daß die Aufarbeitung TMP enthaltender Reaktionsgemische mittels Flüssig-flüssig-Extraktion, z. B. mit Amylalkohol oder Ethylacetat als effizient bezeichnet wird (Dokument (1), Spalte 1, letzter Absatz in Verbindung mit Spalte 4, zweiter Absatz; Dokument (3), Spalte 1, vorletzter Absatz in Verbindung mit Spalte 3, Zeilen 67 bis 71). Eine solche Aufarbeitung des Reaktionsgemisches ist auch nach dem Streitpatent vorgesehen (vgl. die Bezugnahme auf Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 7, Seite 231 (1974) auf Seite 3, Zeilen 22 und 23).

Ob, wie die Beschwerdeführerin meint, die Isolierung des TMP durch die in Entgegenhaltung (3) beschriebene Extraktion mit Ethylacetat tatsächlich im wesentlichen vollständig gelingt kann von der Kammer, mangels weitergehender Informationen, nicht abschließend geklärt werden. Dies ist aber für die zu treffende Entscheidung ohne Belang. Jedenfalls standen dem Fachmann wirkungsvolle Verfahren zur Isolierung von TMP aus dem Reaktionsgemisch zur Verfügung. Im Hinblick auf die Beispiele 1 bis 3 des Streitpatents, in denen als theoretische Ausbeute (bezogen auf n-Butyraldehyd) 94,5 %, 90,7 % bzw. 93,4 % angegeben wird (Seite 3, Zeile 50, Seite 4, Zeilen 9 und 33), ist daher glaubhaft, daß das Verfahren des Streitpatents TMP in zumindest vergleichbar hohen Ausbeuten wie das Verfahren nach Dokument (3) liefert.

Die Aufgabe, die dem Streitpatent zugrunde liegt und die durch dieses mittels der Merkmale i) bis v) nach Überzeugung der Kammer auch gelöst wird, ist daher im Vorschlag einer Alternative zu dem aus Dokument (3) bekannten Verfahren zu sehen, wobei zumindest vergleichbare TMP-Ausbeuten erreicht werden sollen.

4.4 Es ist nun zu entscheiden, ob der Lösungsvorschlag des Streitpatents auf erfinderischer Tätigkeit beruht.

Nach Auffassung der Kammer konnte der Fachmann Dokument (3) keinerlei Anregung für die Lösung der Aufgabe durch das anspruchsgemäße Verfahren entnehmen; denn dort wird von der patentgemäßen Verfahrensweise (Merkmal i) abgeraten ("It is less desirable..."), einen der beiden Aldehyd mit Natriumhydroxid vorzumischen, da diese Aldehyde in Anwesenheit von Natriumhydroxid zu unerwünschter Autokondensation neigen (Spalte 2, Zeilen 36 bis 40). Ein

Fachmann, der sich - wie hier - das Auffinden eines zu (3) alternativen Verfahrens unter Beibehaltung der in (3) angegebenen hohen Ausbeute zum Ziel gesetzt hatte, hätte keine Maßnahmen ergriffen, die eben dort als nachteilig, d. h. ausbeutevermindernd bezeichnet werden.

Auch unter Berücksichtigung der älteren Lehre von Dokument (1), kommt die Kammer zu keinem anderen Ergebnis. Jene betrifft in erster Linie die Gewinnung von TMP in hoher Reinheit aus wäßrigen Reaktionsgemischen (Spalte 1, Zeilen 9 bis 12). Die Herstellung eines solchen Reaktionsgemisches wird in Beispiel 1 beschrieben. Danach wird n-Butyraldehyd zu einem auf 20°C gekühlten Gemisch von wäßrigem Natriumhydroxid und wäßrigem, methanolfreiem Formaldehyd gegeben, wobei die Temperatur auf 30°C steigt. Nach einstündigem Rühren bei 30°C und Neutralisation des Reaktionsgemisches durch Zugabe von Ameisensäure ist dessen Gehalt an TMP 15,9 % (Beispiel 1, Spalte 3, Zeile 70 bis Spalte 4, Zeile 10). Die Ausbeute an TMP, die in diesem Beispiel nicht angegeben wird, beträgt nach einer unbestrittenen Berechnung der Beschwerdeführerin rund 70 %, bezogen auf n-Butyraldehyd (Seite 2, Zeilen 12 bis 14 des Streitpatents). Diese niedrige Ausbeute konnte den Fachmann aber nicht dazu anregen, auf eine als nachteilig bekannte Maßnahme dieses Verfahrens zurückzugreifen, wenn er zumindest die wesentlich höhere, aus Dokument (3) bekannte Ausbeute erreichen wollte, selbst wenn er eine Erhöhung der im Dokument (1) genannten Reaktionstemperatur erwogen hätte.

Er wäre in seinen Bedenken gegenüber der Maßnahme i) des jetzigen Patentanspruchs auch durch Dokument (8) bestärkt worden, das nur rund drei Jahre vor dem Prioritätsdatum des Streitpatents veröffentlicht wurde, die Herstellung von TMP in Ausbeuten von etwas über 80 % der Theorie

beschreibt (Seite 9, Zeile 11 und Seite 10, Zeile 5) und ebenfalls von einer Vormischung eines Aldehyds mit dem alkalischen Kondensationsmittel absieht (vgl. den die Seiten 6 und 7 überbrückenden Absatz).

Bei dieser Sachlage braucht nicht untersucht zu werden, ob dem Fachmann die Verwendung methanolarmen Formaldehyds - Merkmal iii) des Patentanspruchs - durch Dokument (2), in dem Methanol als Störfaktor bei der Herstellung von Pentaerythrit aus Acetaldehyd und Formaldehyd beschrieben wird (Seite 1, linke Spalte, Zeilen 20 bis 30), gegebenenfalls in Verbindung mit Dokument (11), nahegelegt wurde, da die erfinderischer Tätigkeit der im Anspruch des Streitpatents vorgeschlagenen Kombination bereits vom Merkmal i) getragen wird.


Entscheidungsformel

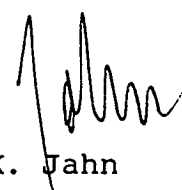
Aus diesen Gründen wird entschieden:

1. Die Entscheidung der Einspruchsabteilung wird aufgehoben.
2. Das Patent bleibt bestehen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:


E. Görgmaier


K. Jahn