

Interner Verteilerschlüssel:

- (A) Veröffentlichung im ABl.
(B) An Vorsitzende und Mitglieder
(C) An Vorsitzende

E N T S C H E I D U N G
vom 20. November 2000

Beschwerde-Aktenzeichen: T 0829/98 - 3.3.3
Anmeldenummer: 93119402.1
Veröffentlichungsnummer: 0601470
IPC: C08G 63/668
Verfahrenssprache: DE

Bezeichnung der Erfindung:
Polyetheresterole, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie
ihre Anwendung in Polyurethanen

Anmelder:
BASF SCHWARZHEIDE GmbH

Einsprechender:
-

Stichwort:
-

Relevante Rechtsnormen:
EPÜ Art. 54

Schlagwort:
"Neuheit - ja, nach Beschränkung auf Verwendung"

Zitierte Entscheidungen:
-

Orientierungssatz:



Aktenzeichen: T 0829/98 - 3.3.3

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.3
vom 20. November 2000

Beschwerdeführer: BASF SCHWARZHEIDE GmbH
Schipkauer Straße 1
D-01987 Schwarzheide (DE)

Vertreter: Abel, Manfred
BASF Aktiengesellschaft
Patentabteilung ZDX - C6
D-67056 Ludwigshafen (DE)

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Prüfungsabteilung des Europäischen Patentamts, die am 19. März 1998 zur Post gegeben wurde und mit der die europäische Patentanmeldung Nr. 93 119 402.1 aufgrund des Artikels 97 (1) EPÜ zurückgewiesen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: C. Gérardin
Mitglieder: P. Kitzmantel
A. Lindqvist

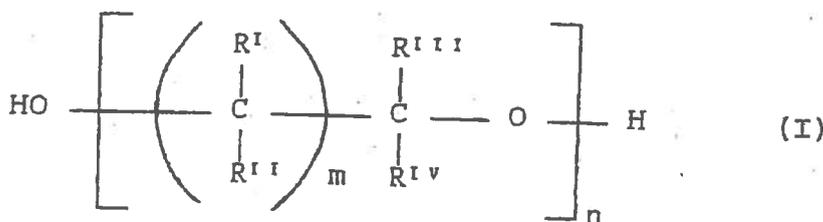
Sachverhalt und Anträge

I. Die vorliegende am 18. Mai 1998 eingegangene Beschwerde richtet sich gegen die Entscheidung der Prüfungsabteilung vom 19. März 1998, mit der die europäische Patentanmeldung Nr. 93 119 402.1, angemeldet am 2. Dezember 1993 unter Beanspruchung einer DE Priorität vom 9. Dezember 1992 und veröffentlicht unter der Nr. 0 601 470, zurückgewiesen wurde.

Die Beschwerdegebühr wurde gleichzeitig mit der Einlegung der Beschwerde entrichtet; die schriftliche Beschwerdebegründung ist am 14. Juli 1998 eingegangen.

II. Die angefochtene Entscheidung beruhte auf der mit Schriftsatz vom 12. August 1997 eingereichten, drei Ansprüche enthaltenden Anspruchsfassung, deren Anspruch 1 wie folgt lautete:

"1. Verfahren zur Herstellung von Polyurethanen mit verminderter Fogentwicklung durch Umsetzung von Polyetheresterolen mit Isocyanatkomponenten, dadurch gekennzeichnet, daß als Polyetheresterole Kondensationsprodukte aus mehrfunktionellen Carbonsäuren mit einer ethergruppenhaltigen Alkoholkomponente eingesetzt werden und als ethergruppenhaltige Alkoholkomponente Alkandiole und Etherdiole der allgemeinen Formel



mit $m = 1$ bis 3
 $n \geq 3$ und
 $R^I, R^{II}, R^{III}, R^{IV}$: gleich oder verschieden und
unabhängig voneinander gleich einem
Wasserstoffatom oder einer C_1 - bis C_4 -
Alkylgruppe [n]

eingesetzt werden und das Verhältnis von Ether- zu
Estergruppen im Polyetheresterol im Bereich von $0,3 : 1$
bis $1,5 : 1$ liegt."

Anspruch 2 war auf die Verwendung der gemäß Anspruch 1
definierten Polyetheresterole zur Herstellung von
Polyurethanen mit verminderter Fogentwicklung durch an
sich bekannte Umsetzung mit Isocyanatkomponenten
gerichtet, und Anspruch 3 bezog sich auf ein Verfahren
zur Herstellung der Polyetheresterole.

III. In der Entscheidung wurde festgestellt, daß der
Gegenstand des Anspruchs 1 der Anmeldung gegenüber den
Entgegenhaltungen

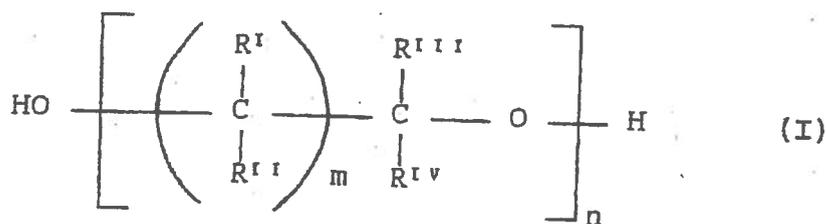
D1: EP-A-0 178 562,
D2: GB-A-2 200 646,
D3: GB-A-1 185 418 und
D4: FR-A-1 214 397

nicht neu sei, weil jede dieser Entgegenhaltungen ein
Verfahren zur Herstellung von Polyurethanen unter
Verwendung eines wie in diesem Anspruch spezifizierten
Polyetheresterols offenbare. Der gemäß den Ansprüchen 1
und 2 angestrebte Effekt einer "verminderten
Fogentwicklung" könne die Neuheit gegenüber diesen
Entgegenhaltungen nicht herstellen, weil es sich dabei
um ein auch den dort offenbarten Verfahren inhärentes
Merkmal handle, das sich somit nicht zur unter-
scheidenden Kennzeichnung eigne.

IV. In der Beschwerdebeurteilung beanstandete die Beschwerdeführerin zunächst, daß eine Verletzung von Artikel 113 (1) EPÜ vorliege, weil sie vor Erlass der angefochtenen Entscheidung keine Gelegenheit für eine Stellungnahme zur darin ausgeführten Argumentation der Prüfungsabteilung bezüglich der fehlenden Relevanz des Fogging-Merkmals gehabt habe.

In der Sache selbst verteidigte die Beschwerdeführerin zwar in der Beschwerdebeurteilung ihre vor der ersten Instanz geäußerte Ansicht, daß das vorerst weiterhin beanspruchte Verfahren gegenüber den Entgegenhaltungen D1 und D4 wegen der darin fehlenden Offenbarung eines verbesserten Foggingverhaltens neu und auch erfinderisch sei, zog sich aber in Reaktion auf den Bescheid der Kammer vom 24. August 2000 mit ihrem Schriftsatz vom 12. Oktober 2000 auf folgenden einzigen Verwendungsanspruch zurück:

"1. Verwendung von Polyetheresterolen, die Kondensationsprodukte sind aus multifunktionellen Carbonsäuren, Alkandiolen und Etherdiolen der allgemeinen Formel (I)



mit $m = 1$ bis 3
 $n \geq 3$ und
 R^{I} bis R^{IV} - unabhängig voneinander, gleich oder verschieden, ein Wasserstoffatom oder eine C_1 - bis C_4 -Alkylgruppe bedeuten,

und die ein Verhältnis von Ether- zu Estergruppen von 0,3 : 1 bis 1,5 : 1 aufweisen, als fogvermindernde Polyolkomponente für die Herstellung von Polyurethanschäumen durch an sich bekannte Umsetzung mit Isocyanatkomponenten."

Gleichzeitig mit der Einreichung des geänderten einzigen Anspruchs legte die Beschwerdeführerin auch die Seiten 1 bis 12 einer angepaßten Beschreibung vor, deren Seiten 4 und 10 sie schließlich mit Schriftsatz vom 20. November 2000 nochmals korrigierte.

- V. Die Beschwerdeführerin beantragte die Aufhebung der angefochtene Entscheidung und die Erteilung eines Patents auf der Grundlage des mit Schriftsatz vom 12. Oktober 2000 eingereichten einzigen Anspruchs, der gleichzeitig eingereichten Beschreibungsseiten 1 bis 3, 5 bis 9, 11 und 12 sowie der mit Schriftsatz vom 20. November 2000 vorgelegten Beschreibungsseiten 4 und 10.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.
2. *Artikel 113 (1) EPÜ*

Eine von der Beschwerdeführerin gerügte Verletzung des rechtlichen Gehörs wegen Stützung der angefochtenen Entscheidung auf Gründe, zu denen sie sich vorher nicht äußern konnte, liegt nicht vor.

Vielmehr hatte die Prüfungsabteilung - wie im Detail in den Punkten 4 bis 13 des Bescheids vom 24. August 2000 dargelegt - das behauptetermaßen erstmals in der Entscheidung angeführte Argument der fehlenden

Unterscheidungskraft des Merkmals einer verminderten Fogenwicklung schon vorher im Verlaufe des Prüfungsverfahrens ausreichend kommentiert.

Zu den diesbezüglichen Darlegungen im genannten Bescheid hat sich die Beschwerdeführerin im darauffolgenden Schriftsatz nicht geäußert.

Eine Verletzung der Bestimmung des Artikels 113 (1) EPÜ liegt daher nicht vor und somit auch kein Verfahrensmangel, der allenfalls eine Rückzahlung der Beschwerdegebühr zur Folge haben hätte können.

3. *Stand der Technik*

3.1 Entgegenhaltung D1

Diese Entgegenhaltung betrifft gemäß Anspruch 1 ein Verfahren zur Herstellung von Polyetheresterolen durch Reaktion

- A) 1) mindestens eines Polyalkylenetherpolyols mit einem Molekulargewicht von 400 bis 10000 mit
- 2) mindestens einer Verbindung aus der Gruppe der Dicarbonsäuren, ihrer Di-C₁-C₄-Ester, ihrer Anhydride oder Mischungen dieser Verbindungen, in einem Molverhältnis COOH/OH von 1.4 : 1 zu 8 : 1 (wobei eine Anhydridgruppe für zwei COOH-Gruppen zählt), und
- B) Weiterreaktion des Reaktionsprodukts A) mit mindestens einem aliphatischen und/oder cycloaliphatischen Diol mit einem Molekulargewicht von 62 bis 399 bei einem OH/COOH Äquivalentverhältnis von mindestens 1.6 : 1.

Gemäß dem Reaktionsschema auf Seiten 10 und 11 und im Einklang mit den Beispielen werden in der Stufe A 1 Mol Polyetherdiol mit 2 Mol Dicarbonsäure umgesetzt und dieses Zwischenprodukt wird in Stufe B mit 2 Mol Diol zum Polyetheresterol fertig reagiert, das dann vier Estergruppen aufweist.

Gemäß Beispiel 1.16 (Tabelle 1, Seite 24), das ein Polypropylenglykol (Molgewicht der Einheit Propylen-O: 58) mit einem Molekulargewicht von 200 verwendet, errechnet sich (bei Vernachlässigung der Anwesenheit der 0.05 Mol eines Glycerin-gestarteten Polyethers) unter Berücksichtigung der Tatsachen, daß (i) bei der Kondensation 1 Mol Wasser (Molgewicht 18) abgespalten wird, daß (ii) die endständige Einheit Propylen-OH nicht zur Zahl der Ethergruppen beiträgt und daß (iii) das Molverhältnis Säure (A) zu Propylenglykol (B) 2:1 ist (und somit pro Mol Glykol 4 Estergruppen vorliegen: cf. Beispiel 1, "Esterification Stage 1", Seite 20, Zeilen 2 bis 10) ein Molverhältnis Ether-/Ester-Gruppen von etwa 0.53. Dieses Polyetheresterol fällt somit unter die im vorliegenden Anspruch angegebene Spezifikation.

Gemäß Seite 14, Zeilen 10 bis 14 werden die Polyetheresterole für die Herstellung von gegebenenfalls geschäumten oder zelligen Polyurethanen verwendet. Ein Hinweis auf eine fogvermindernde Wirkung (cf. folgender Punkt 5, zweiter Absatz) der Polyetheresterole findet sich in D1 nicht.

3.2 Entgegenhaltung D2

Anspruch 1 dieser Entgegenhaltung bezieht sich auf ein Polymerpolyol der Formel $R^1[COOR(OH)_m]_n$, worin R der Rest eines Polyetherpolyols und R^1 ein um die Carboxy-Endgruppen verminderter Polyester-Rest sind, m eine

ganze Zahl vom Wert mindestens 1 ist, n eine ganze Zahl vom Wert 2 bis 4 ist und das Produkt von m und n einen Wert von 2 bis 4 hat.

Gemäß Seite 3, Zeilen 1 bis 14 erfolgt die Herstellung der Polyetheresterole durch Umesterung eines Polycarbonsäureesters der Formel $R^1(\text{COOM})_n$ (M = C₁-C₄-Alkyl) mit einem Polyetherpolyol der Formel $R(\text{OH})_{m+1}$.

Gemäß Beispiel 2 (in Verbindung mit Beispiel 1: cf. Seite 5, Zeile 12 bis Seite 7, Zeile 11) werden 3777 Gewichtsteile (23.66 Mol) Dicarbonsäure-dimethylester (Gemisch enthaltend 20 % (4.33 Mol) Adipinsäureester, 60 % (14.16 Mol) Glutarsäureester und 20 % (5.17 Mol) Bernsteinsäureester) mit 1270 Gewichtsteilen (20.48 Mol) Ethylenglykol und danach mit 2330 Gewichtsteilen (5.825 Mol) Polypropylenglykol MG 400 umgesetzt. Unter Berücksichtigung der bei der Diskussion der Entgegenhaltung D1 unter Punkt 3.1 supra dargelegten Reaktionsverhältnisse, die auch hier gelten, errechnet sich ein Molverhältnis Ether-/Ester-Gruppen von etwa 0.69. Dieses Polyetheresterol fällt somit unter die im vorliegenden Anspruch angegebene Spezifikation.

Gemäß Seite 5, Zeilen 3 bis 6 werden die Polyetheresterole insbesondere für die Herstellung von Polyurethanelastomeren mit mikrozellulärer oder kompakter Struktur verwendet. Ein Hinweis auf eine fogvermindernde Wirkung der Polyetheresterole findet sich in D2 nicht.

3.3 Entgegenhaltung D3

Anspruch 1 dieser Entgegenhaltung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Polyurethanlösung, die sich zur Herstellung von Formkörpern durch Entfernung des Lösungsmittels eignet, wobei zunächst ein Prepolymer mit freien Isocyanatgruppen hergestellt wird aus

- a) einer Polyhydroxykomponente eines Molekulargewichts von 500 bis 5000, die aus mindestens einem linearen Polyester oder Polyetherester mit endständigen Hydroxylgruppen besteht und die hergestellt wurde durch Reaktion einer aliphatischen Dicarbonsäure mit einem aliphatischen Diol oder Diolether der allgemeinen Formel $\text{OH}-(\text{CH}_2-\text{CHR})_y-\text{O}-[-(\text{CH}_2-\text{CHR})_z-\text{O}]_n-\text{H}$, worin R gleich H, Methyl oder Ethyl ist, y und z je 1 oder 2 und n 0 bis 12 sind, und
- b) einem polyfunktionellen Isocyanat und das Prepolymer dann mit einem Kettenverlängerungsmittel umgesetzt wird.

Gemäß Beispiel 3 werden 584 g Adipinsäure (≈ 4 Mol), 417 g Diethylenglykol (≈ 3.93 Mol) und 393 g (≈ 1.95 Mol) lineares Polypropylenglykol OH-Zahl 281 (was einem Molekulargewicht von etwa 400 entspricht: OH-Zahl 1 ≈ 0.03 % OH). Daraus errechnet sich unter Berücksichtigung der bei der Diskussion der Entgegenhaltung D1 unter Punkt 3.1 supra dargelegten Reaktionsverhältnisse, die auch hier gelten, ein Molverhältnis Ether-/Ester-Gruppen von etwa 0.69. Auch dieses Polyetheresterol fällt somit unter die im vorliegenden Anspruch angegebene Spezifikation.

Ein Hinweis auf eine fogvermindernde Wirkung der Polyetheresterole findet sich in D3 nicht.

3.4 Entgegenhaltung D4

Diese Entgegenhaltung betrifft nach Anspruch 1 ein Verfahren zur Herstellung von Polyurethan-Kunststoffen unter Verwendung von Polyolen, erhalten (a) durch Reaktion von sekundäre Hydroxylgruppen aufweisenden Polyetherpolyolen mit Polycarboxylsäuren oder Polyamiden

und (b) Weiterreaktion dieses Produkts mit Alkylenglykolen, Polyalkoholen, Aminen oder Aminoalkoholen.

Gemäß Beispiel 3 werden zur Herstellung des Polyols zunächst 10000 Gewichtsteile lineares Polypropylenoxid des Molekulargewichts 2000 (5 Mol) mit etwa 1375 Gewichtsteilen (9.42 Mol) Adipinsäure zur Reaktion gebracht und dieses Produkt mit 830 Gewichtsteilen (13.39 Mol) Ethylenglykol weiter reagiert.

Daraus errechnet sich unter Berücksichtigung der bei der Diskussion der Entgegenhaltung D1 unter Punkt 3.1 supra dargelegten Reaktionsverhältnisse, die auch hier gelten, ein Molverhältnis Ether-/Ester-Gruppen von etwa 6.2, d. h. ein Wert jenseits des Maximums von 1.5 des im vorliegenden Anspruch definierten Polyetheresterols. Allerdings kann gemäß dem überleitenden Satz der Spalten auf Seite 2 das Molekulargewicht des Polypropylenoxids auch nur 300 betragen, in welchem Fall sich das Molverhältnis Ether-/Ester-Gruppen entsprechend erniedrigt.

Gemäß Seite 1, rechte Spalte, zweiter Absatz hatte sich D4 die Aufgabe der Bereitstellung eines Verfahrens zur Herstellung von Polyurethanen (i. a. Schaumstoffe, Klebstoffe, Lacke) aus Polyalkylenoxiden mit sekundären OH-Gruppen ohne die Notwendigkeit der Zwischenstufe eines Präpolymeren gestellt.

Ein Hinweis auf eine fogvermindernde Wirkung der Polyetheresterole findet sich in D4 nicht.

4. *Neuheit*

Da keiner der im Verfahren befindlichen Entgegenhaltungen die Verwendung der dort jeweils offenbarten Polyetheresterole zur Herstellung von Polyurethan-

schaumstoffen mit fogvermindernder Wirkung zu entnehmen ist, ist der beanspruchte Gegenstand neu.

5. *Technisches Problem*

Gemäß Seite 3, Zeilen 28 bis 31 der Anmeldungsunterlagen liegt dem Gegenstand der vorliegenden Anmeldung die Aufgabe zugrunde, Polyetheresterole zu entwickeln, die einfach hergestellt und zu Kunststoffen, insbesondere Polyurethanschäumen (Seite 7, Zeilen 12 bis 15), mit gegenüber Polyurethanschäumen aus konventionellen Polyetheresterolen (cf. Seite 2, Zeilen 16 bis 36) verminderter Fogentwicklung verarbeitet werden können.

Als Fogging bezeichnet man dabei im Zuge der Verwendung aus dem Kunststoff austretende flüchtige Verbindungen, die sich z. B. bei der Verwendung der Materialien zur Inneneinrichtung von Fahrzeugen an den Scheiben niederschlagen (Seite 2, Zeilen 34 bis 41 der Beschreibung).

6. *Lösung des technischen Problems*

Die Lösung dieser Aufgabe erfolgt erfindungsgemäß durch die Verwendung der im Anspruch spezifizierten Polyetheresterole als Polyolkomponente für die Herstellung von Polyurethanschäumen durch an sich bekannte Umsetzung mit Isocyanatkomponenten.

Die erfindungsgemäßen Beispiele 2 bis 5, 7 und 9 bis 11 zeigen, daß Polyurethanschäume, die mit Hilfe der im vorliegenden Anspruch spezifizierten Polyetheresterole hergestellt wurden, deren Etherdiolkomponente gemäß Formel (I) durch den Wert $n \geq 3$ gekennzeichnet ist, gegenüber solchen aus konventionellen Polyetheresterolen, deren Etherdiolkomponente einen Wert von $n = 2$ haben, in der Regel erheblich geringere Mengen an kondensierbaren Bestandteilen (bestimmt nach DIN 75201)

aufweisen. Da diese Bestandteile den Fogging-Effekt bewirken, belegen diese Ergebnisse, daß die vorliegende technische Aufgabe einer Verminderung dieses Effekts durch die Verwendung der anspruchsgemäßen Polyetheresterole gelöst wird.

7. *Naheliegen*

Da sich in keiner der Entgegenhaltungen D1 bis D4 ein Hinweis auf die Eignung von Polyetheresterolen, die die Definition gemäß vorliegendem Anspruch erfüllen, zur Verwendung als fogvermindernde Polyolkomponente für die Herstellung von Polyurethanschäumen durch an sich bekannte Umsetzung mit Isocyanatkomponenten findet, ist der Gegenstand dieses Verwendungsanspruchs von den Offenbarungen dieser Entgegenhaltungen auch nicht nahegelegt.

8. Die Beschreibung genügt den Bestimmungen des EPÜ, insbesondere denen des Artikels 84 EPÜ.

Entscheidungsformel

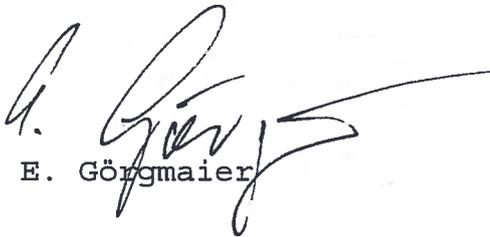
Aus diesen Gründen wird entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Die Angelegenheit wird an die erste Instanz mit der Anordnung zurückverwiesen, ein Patent auf der Grundlage folgender Unterlagen zu erteilen:

17.5-12-02

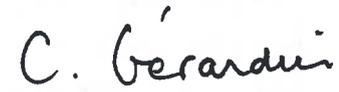
- einziger Anspruch, eingegangen mit Schriftsatz vom 12. Oktober 2000,
- Beschreibung, Seiten 1 bis 3, 5 bis 9, 11 und 12 laut Schriftsatz vom 12. Oktober 2000,
- Beschreibung, Seiten 4 und 10 laut Schriftsatz vom 20. November 2000.

Die Geschäftsstellenbeamtin:



E. Görgmaier

Der Vorsitzende:



C. Gérardin

C. Gérardin