

Veröffentlichung im Amtsblatt Ja / Nein
Publication in the Official Journal Yes / No
Publication au Journal Officiel Oui / Non



Aktenzeichen / Case Number / N° du recours :

T 18/86

Anmeldenummer / Filing No / N° de la demande :

81 101 674.0

Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N° de la publication :

36 539

Bezeichnung der Erfindung:

Title of invention:

Titre de l'invention :

Verfahren zur Herstellung von Acetalen des
Methylglyoxals

Klassifikation / Classification / Classement :

C 07 C 43 / 303

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du

27. Oktober 1986

20

Anmelder / Applicant / Demandeur :

Patentinhaber / Proprietor of the patent /
Titulaire du brevet :

Hoechst (Beschwerdegegner)

Einsprechender / Opponent / Opposant :

BASF (Beschwerdeführer)

Stichwort / Headword / Référence :

EPÜ / EPC / CBE

Art. 56

"Erfinderische Tätigkeit - verneint"

Leitsatz / Headnote / Sommaire



Aktenzeichen: T 18/86

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 27. Oktober 1986

Beschwerdeführer: BASF Aktiengesellschaft
(Einsprechender) Carl-Bosch-Straße 38
D-6700 Ludwigshafen

Vertreter:

Beschwerdegegner: HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT
(Patentinhaber) Zentrale Patentabteilung
Postfach 80 03 20
D-6230 Frankfurt am Main 80

Vertreter:

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Einspruchsabteilung
des Europäischen Patentamts vom
15.11.1985, mit der der Einspruch
gegen das europäische Patent Nr.
36 539 aufgrund des Artikels 102(2)
EPÜ zurückgewiesen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn
Mitglied: J. Arbouw
Mitglied: G. Paterson

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die europäische Patentanmeldung 81 101 674.0, die am 07.03.81 unter Inanspruchnahme der Priorität aus der Voranmeldung vom 20.03.80 (DE 3 010 712) angemeldet worden war, ist am 27.07.83 das europäische Patent 36 539 erteilt worden. Der einzige Anspruch lautete:

"Verfahren zur Herstellung von Acetalen des Methylglyoxals aus Alkoholen, die mit Wasser nicht oder nur begrenzt mischbar sind, und einer wäßrigen Methylglyoxal-Lösung in Gegenwart eines sauren Katalysators unter azeotropem Entfernen des Wassers und bei Temperaturen zwischen 30°C und 100°C, dadurch gekennzeichnet, daß man bei Unterdruck zwischen 0,01 und 0,8 bar das Wasser mit Hilfe des eingesetzten Alkohols als Schlepptmittel azeotrop entfernt."

- II. Gegen die Erteilung des europäischen Patents hat die Einsprechende am 07.04.84 Einspruch eingelegt und den Widerruf des Patents wegen mangelnder Patentfähigkeit nach den Artikeln 52 - 57 EPÜ beantragt. Die Begründung wurde auf die folgenden Entgegnungen gestützt:

- (1) W.L. Perelman: Taschenbuch der Chemie. Berlin (VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften) (1959), S. 611;
- (2) Houben-Weyl: Methoden der Organischen Chemie, Vol. 7, Teil 1, Stuttgart (G. Thieme Verlag) (1954) S. 419-420;
- (3) US-A- 2 421 559;

- III. Durch Entscheidung vom 15.11.85 hat die Einspruchsabteilung den Einspruch zurückgewiesen. Die Zurückweisung wurde im wesentlichen damit begründet, daß das Verfahren nach

dem Streitpatent gegenüber (3) erfinderisch sei, weil anzunehmen sei, die Autoren von (3) seien überzeugt gewesen, daß die Acetalisierung von Methylglyoxal nur dann mit befriedigenden Ausbeuten erfolge, wenn ein externes, inertes Schleppmittel zu Hilfe genommen werde.

Der sehr allgemein gehaltene Hinweis auf die Reaktionsführung bei reduziertem Druck (vgl. (3), Spalte 2, Zeilen 38-40) führe nicht auf das Streitpatent hin, sondern im Gegenteil davon weg, weil hierbei niedrigere Ausbeuten zu erwarten gewesen seien.

Auch das Wissen aus (2) um die Acetalisierung von Glyoxal mit überschüssigem n-Butanol unter laufender Entfernung des n-Butanol-Wasser Aceotrops, zusammen mit der Kenntnis der Siedepunkte dieses sowie des Isobutanol-Wasser Aceotrops aus (1) habe nicht ausgereicht, das Verfahren nach dem Streitpatent zu entwickeln; denn bei der Übertragung dieser Lehren auf den Ketoaldehyd Methylglyoxal sei dessen unerwünschte Ketalisierung zu erwarten gewesen.

- IV. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin am 16.01.86 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgesehenen Gebühr Beschwerde erhoben und diese am 08.03.86 begründet. Danach sei (3) in der Entscheidung unzutreffend gewürdigt worden. Gemäß Beispiel 1 ergebe sich gerade, daß trotz eines Alkoholüberschusses Methylglyoxal in guter Ausbeute acetalisiert werde. Das schlechte Abschneiden des in Beispiel 1 erwähnten Vergleichsversuchs sei offensichtlich auf das Überschreiten der zulässigen Maximaltemperatur von 100° C zurückzuführen, was durch naheliegende Anwendung von Unterdruck erkennbar zu vermeiden war.
- V. Die Beschwerdegegnerin hingegen betont, daß die beiden Möglichkeiten zur Wasserentfernung unter 100°C in (3)

nicht als gleichrangig dargestellt werden, und daß die Verwendung eines inerten Schleppmittels als "the most important method" bezeichnet werde. Weiter führt sie aus, daß im Vergleichstest des Beispiels 1 aus (3) mit einem wesentlich höheren Alkoholüberschuß gearbeitet werde als im Beispiel selbst. Der Fachmann ziehe aus den viel schlechteren Ergebnissen des Vergleichstests automatisch den Schluß, daß ein Alkoholüberschuß offenbar schädlich sei.

- VI. Die Beschwerdeführerin (Einsprechende) beantragt die Aufhebung der Entscheidung und den Widerruf des Patents. Die Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin) beantragt dagegen, die Beschwerde zurückzuweisen.

ENTSCHEIDUNGSGRÜNDE

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 sowie Regel 64 EPÜ; sie ist daher zulässig.
2. Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Acetalen des Methylglyoxals aus Alkoholen, die mit Wasser nicht oder nur begrenzt mischbar sind, und einer wäßrigen Methylglyoxal-Lösung in Gegenwart eines sauren Katalysators unter azeotropem Entfernen des Wassers bei Temperaturen zwischen 30°C und 100°C. Wie in der Beschreibungseinleitung zum vorliegenden Patent (Seite 2, Zeilen 10-20) ausgeführt, ist ein Verfahren dieser Art bereits aus (3) bekannt. Dabei wird das bei dieser Reaktion gebildete Wasser mittels einer unter 100°C siedenden, inerten, mit Wasser nicht mischbaren organischen Flüssigkeit als Schleppmittel erhitzt und das entstehende Reaktionswasser bei einer Temperatur zwischen 50°C und 100°C azeotrop abdestilliert (vgl. Spalte 2, Zeilen 24 - 38 und Anspruch 1). Als Schleppmittel werden Benzol, Diisopropylether,

Ethylacetat und Ethylendichlorid angeführt (vgl. Spalte 2, Zeilen 35 - 38); in den Beispielen wird ausschließlich Benzol verwendet. Ziel des Schleppmittel-Zusatzes ist es, das Reaktionswasser bei Temperaturen unterhalb 100°C dem Reaktionsgleichgewicht zu entziehen, da sich die Acetale des Methylglyoxals bei Temperaturen oberhalb 100° C in die Ester der α -Alkoxy-carbonsäure umlagern (vgl. Spalte 2, Zeilen 1 - 16). Dabei werden hohe Ausbeuten erzielt (vgl. Beispiel 1 : 75 % Methylglyoxaldisbutylacetat).

Dieses Verfahren ist wirtschaftlich und verfahrenstechnisch unbefriedigend, da der Zusatz eines eigenen Schleppmittels - abgesehen von den Materialkosten - die Aufarbeitung, insbesondere die Rückgewinnung des nicht umgesetzten Alkohols, sowie die Isolierung des Acetals beträchtlich erschwert.

3. Diesem nächstliegenden Stand der Technik gegenüber ist daher die patentgemäß bestehende technische Aufgabe darin zu sehen, ein weiteres Verfahren zur Herstellung von Acetalen des Methylglyoxals anzugeben, das die genannten wirtschaftlichen Nachteile nicht aufweist, ohne den bekannt hohen Standard an Ausbeute zu beeinträchtigen.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß man das Verfahren bei Unterdruck zwischen 0,01 und 0,8 bar durchführt und das Wasser mit Hilfe des eingesetzten Alkohols als Schleppmittel azeotrop entfernt.

Es ist auch glaubhaft, daß diese Aufgabe tatsächlich gelöst wird (vgl. die Beispiele).

4. Ein derartiges Verfahren ist in dem der Kammer vorliegenden durckschriftlichen Stand der Technik nicht vorbeschrieben, also neu.

5. Es ist daher zu untersuchen, ob es für den Fachmann angesichts der Aufgabe - ein weiteres, von wirtschaftlichen Nachteilen freies Verfahren zur Herstellung von Acetalen des Methylglyoxyls anzugeben, welches zugleich hohe Ausbeuten aufweist - nahelag, hierfür das Verfahren nach dem Streitpatent vorzuschlagen.
- 5.1 Betrachtet man den nächsten Stand der Technik (3), so ist zunächst zu beachten, daß es bei der Herstellung von Acetalen des Methylglyoxals darauf ankommt, die unerwünschte Umlagerung der Acetale in die Ester der - Alkoxy-carbonsäure auszuschalten. Dies wird dadurch erreicht, daß man die Reaktion bei Temperaturen unterhalb 100°C durchführt, weil die unerwünschte Umlagerung erst bei Temperaturen oberhalb 100°C stattfindet (vgl. (3), Spalte 2, Z. 1-16 und Anspruch 1). Hierzu wird eine unter 100°C siedende, inerte, mit Wasser nicht mischbare Flüssigkeit als Schleppmittel eingesetzt und damit das entstehende Reaktionswasser unterhalb 100°C azeotrop abdestilliert (vgl. Spalte 2, Z. 33-38 und Anspruch 1).
- 5.2 Darin erschöpft sich die Lehre von (3) jedoch nicht; vielmehr heißt es auf Spalte 2, Zeilen 30-40, bes. 38-40, daß die Entfernung des Reaktionswassers auch durch Abdestillieren unter vermindertem Druck unterhalb 100° C eine weitere, wenngleich nicht bevorzugte Möglichkeit darstellt. Hierbei gehen Wasser und Alkohol azeotrop über. Dies setzt nach allgemeinem Fachwissen des Chemikers voraus, daß der Alkohol im Überschuß eingesetzt wird (vgl. dazu auch (3), Beispiel 1, Vergleichstest, wo die gleiche Reaktion unter atmosphärischem Druck und höheren Temperaturen durchgeführt wird).

- 5.3 Von dieser Verfahrensvariante macht das Verfahren nach dem Streitpatent Gebrauch mit der einzigen Präzisierung des hierbei anzuwendenden Unterdrucks, der 0,01 bis 0,8 bar betragen soll.

Hierzu bedurfte es keiner erfinderischen Überlegungen; denn bereits die patentgemäß bestehende Teilaufgabe, das bekannte Verfahren wirtschaftlicher zu gestalten, zwang den Fachmann förmlich dazu, auf das als nachteilig empfundene separate Schleppmittel zu verzichten und stattdessen auf das Vorbild der Arbeitsweise mit Unterdruck ohne zusätzliches inertes Schleppmittel zurückzugreifen. Die Festlegung der Grenzen des hierfür geeigneten Unterdrucks ist reine Routinearbeit.

Dieser Lösungsgedanke stand auch nicht im Widerspruch mit Erwartungen bezüglich der Lösung der weiteren Teilaufgabe, die auf die Beibehaltung hoher Ausbeuten abzielte; denn bei strikter Befolgung der Lehre nach (3), die bei der Acetalisierungsreaktion eine Temperatur von unter 100° C unter gleichzeitiger aceotroper Entfernung des hierbei gebildeten Wassers vorschreibt, war auch mit keiner Einbuße bezüglich der Ausbeute an Acetal zu rechnen.

- 5.4 Dies wurde von der Beschwerdegegnerin zunächst damit bestritten, daß in einem solchen Fall in (3) sicher die Verfahrensvariante als die bevorzugte Ausführungsform hervorgehoben worden wäre, welche die Destillation bei Unterdruck ohne Einsatz eines separaten Schleppmittels beschreibt und nicht - wie tatsächlich geschehen - das bevorzugte Abdestillieren des Reaktionswassers mit einem eigenen Schleppmittel bei Normaldruck. Diese Argumentation geht schon deshalb ins Leere, weil die 1944 konzipierte Entgegenhaltung (3) auf die Ausschaltung der störenden Umlagerung des Acetals in Alkoxyester abzielt, ohne daß

andere wirtschaftliche Aspekte, etwa bei der Aufarbeitung des Reaktionsprodukts erkennbar werden. Möglicherweise haben die Autoren von (3) aber auch die Anwendung von Unterdruck als nachteilig, weil aufwendig angesehen und deshalb den Einsatz eines separaten Schleppmittels bevorzugt, welches das Arbeiten bei Normaldruck gestattet.

- 5.5 Die Beschwerdegegnerin kann auch nicht mit dem Einwand gehört werden, die in (3) beschriebene Verfahrensvariante, die sich den Alkohol nicht nur als Reaktionspartner, sondern auch als Schleppmittel zunutze macht, habe deshalb als untauglich erscheinen müssen, weil der hierbei nötige Alkoholüberschuß eine Ketalisierung des Methylglyoxals habe erwarten lassen; denn dieses unerwünschte Nebenprodukt entsteht trotz Anwendung überschüssigen Alkohols (Beispiel 1: 3,5 facher Überschuß) nur in kleiner Menge (Spalte 3, Zeilen 65 - 67), wenn man die vorgeschriebene Maximaltemperatur nicht überschreitet (Beispiel 1). Läßt man hingegen diesen wesentlichen Parameter entgegen der Lehre von (3) außer acht, so erhöht sich die Menge an Diacetal-diketal (Vergleichsbeispiel 1).
- 5.6 Die Beschwerdegegnerin bringt weiterhin vor, der patentgemäße Vorschlag wäre von einem Fachmann nicht ins Auge gefaßt worden, weil er im Hinblick auf das schlechte Ergebnis des Vergleichsversuchs in (3) zur Lösung der Teilaufgabe des angestrebten hohen Ausbeuteniveaus ungeeignet erschienen wäre. Diese Betrachtungsweise übersieht, daß dieses Vergleichsbeispiel unter Mißachtung der Lehre nach (3) von der Einhaltung einer Maximaltemperatur 100° C bei der Acetalisierung durchgeführt wurde; denn gegen Ende des Acetalisierungsversuchs wird eine Gefäßtemperatur von ca. 135° C erreicht, so daß die hohe Menge an Um-

lagerungsprodukt α -Butoxypropionsäurebutylester nicht überrascht, sondern im Einklang mit der Warnung in Spalte 2, Zeilen 1 - 19 steht. Wenn die Beschwerdegegnerin vorträgt, die Endtemperatur von 135° C werde erst ganz zuletzt erreicht, so daß die Acetalisierung in der Hauptsache bei Temperaturen \leq 100° C durchgeführt wurde, so ist auf das Vergleichsbeispiel 1 der Streitpatentschrift zu verweisen, das praktisch eine Nachstellung des Vergleichsversuchs in Beispiel 1 nach (3) anzusehen ist, wobei die Reaktionstemperatur innerhalb von 6 Stunden von 96° auf ca. 124° C ansteigt.

- 5.7 Demnach beruht das Verfahren nach dem Streitpatent nicht auf erfinderischer Tätigkeit.
6. Bei dieser Sachlage erübrigt sich eine Stellungnahme zu den weiteren von der Beschwerdeführerin im Verfahren angeführte Dokumente.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen

wird entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Das Patent wird widerrufen.

Der Geschäftsstellenbeamte:

Der Vorsitzende:

