

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

Aktenzeichen / Case Number / N^o du recours : T 441/88 - 3.3.1

Anmeldenummer / Filing No / N^o de la demande : 83 106 778.0

Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N^o de la publication : 100 019

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von alpha-substituierten beta-
Title of invention: Dicarbonyl-, beta-Cyancarbonyl- und beta-Dicyan-
Titre de l'invention : verbindungen

Klassifikation / Classification / Classement : C07B 27/00

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du 15.03.1990

Anmelder / Applicant / Demandeur : BASF Aktiengesellschaft

Patentinhaber / Proprietor of the patent /
Titulaire du brevet :

Einsprechender / Opponent / Opposant :

Stichwort / Headword / Référence : Knoevenagel-Kondensation/BASF

EPÜ / EPC / CBE Art. 56, 92 (1); Reg. 45

Schlagwort / Keyword / Mot clé : "Erfinderische Tätigkeit (ja) - nichtvorhersehbare
Ausbeutenverbesserung" "Anordnung zur Patenterteilung
trotz Teilrecherche "

Leitsatz / Headnote / Sommaire

Europäisches
Patentamt
Beschwerdekammern

European Patent
Office
Boards of Appeal

Office européen
des brevets
Chambres de recours



Aktenzeichen: T 0441/88 - 3.3.1

ENTSCHEIDUNG
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 15.03.1990

Beschwerdeführer: BASF Aktiengesellschaft
Carl-Bosch-Str. 38
D-6700 Ludwigshafen

Vertreter:

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Prüfungsabteilung 2.1.10.002 des Europäischen Patentamts vom 29. Juni 1988, mit der die europäische Patentanmeldung Nr. 83 106 778.0 aufgrund des Artikels 97(1) EPÜ zurückgewiesen worden ist.

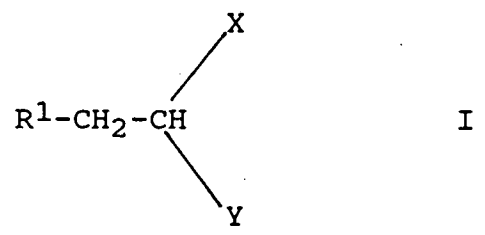
Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn
Mitglieder: P. Krasa
W. Moser

Sachverhalt und Anträge

I. Die am 11. Juli 1983 mit deutscher Priorität vom 22. Juli 1982 eingereichte europäische Patentanmeldung Nr. 83 106 778.0 mit der Veröffentlichungsnummer 100 019 wurde von der Prüfungsabteilung mit Entscheidung vom 29. Juni 1988 aufgrund der ursprünglichen Ansprüche zurückgewiesen. Der einzige unabhängige Anspruch lautet (nach Verbesserung eines offensichtlichen Schreibfehlers in Formel I):

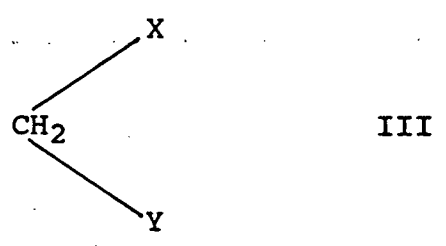
"Verfahren zur Herstellung von α -substituierten β -Dicarbonyl-, β -Cyancarboxyl- und β -Dicyanverbindungen der allgemeinen Formel I



in der R^1 für Wasserstoff oder einen organischen Rest und X und Y für $-COOR^2$; $-CO-R^2$ oder $-CN$ stehen, wobei R^2 einen organischen Rest bedeutet, durch Umsetzung eines Aldehyds II



mit einer Verbindung III



in Gegenwart eines Kondensationskatalysators, von Wasserstoff sowie eines Hydrierkatalysators, dadurch gekennzeichnet, daß man als Kondensationskatalysator ein Oxid oder Phosphat des Magnesiums, Aluminiums, Titans, Zinks oder eines Seltenen Erdmetalls verwendet."

- II. Die Anmeldung wurde insbesondere deshalb zurückgewiesen, weil (3) (EP-A-13 385) die Eignung von Oxiden der Seltenen Erdmetalle als Kondensationskatalysator für die Aldolkondensation beschreibt, wobei hohe Ausbeuten erzielt werden, und die Übertragung dieser Lehre auf die sehr nahe verwandte Knoevenagel-Kondensation gemäß (1) (FR-A-2 073 109) nahelag, zumal der Fachmann aus (5) (Krauch-Kuntz, Reaktionen der organischen Chemie, 5. Auflage, Hüthing Verlag Heidelberg, 1976, S. 77-79) wußte, daß hierbei durch die große Reaktivität der doppelt aktivierten Methylengruppe eine Aldolkondensation verhindert werde.
- III. Gegen diese Entscheidung hat die Anmelderin am 16. August 1988 unter Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde erhoben und diese gleichzeitig begründet. Sie macht geltend, ein Einsatz der aus (3) bekannten Katalysatoren habe nicht nahegelegen, da gerade im Hinblick auf (3) mit störenden Selbstkondensationen der Ausgangsaldehyde zu rechnen gewesen sei; zwar sei bekannt, daß bei homogener Basenkatalyse der Knoevenagel-Kondensation eine Selbstkondensation der Aldehyde, wegen der großen Reaktivität der Methylenkomponente, verhindert werde - dies ließe aber keine Vorhersagen über die Verhältnisse bei Verwendung der erfindungsgemäßen sauren heterogenen Katalysatoren zu.
- IV Die Beschwerdeführerin beantragt, die angefochtene Entscheidung aufzuheben und das Patent im Umfang geänderter

Ansprüche 1 bis 4 zu erteilen, die sich von den ursprünglichen Ansprüchen durch Aufnahme des Merkmals "in flüssiger Phase" in den Anspruch 1 vor "dadurch gekennzeichnet" unterscheidet (Hauptantrag). Hilfsweise wird Patenterteilung aufgrund von weiter eingeschränkten Ansprüchen beantragt.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 sowie der Regel 64 EPÜ, sie ist daher zulässig.
2. Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von β -Dicarbonyl-, β -Cyancarboxyl- und β -Dicyanverbindungen durch Knoevenagel-Kondensation von Aldehyden mit den entsprechenden β -difunktionellen Methylenverbindungen in Gegenwart von Wasserstoff und einem Hydrierkatalysator, wobei die Knoevenagel-Kondensation heterogen durch Oxide oder Phosphate des Magnesiums, Aluminiums, Titans, Zinks oder eines Seltenen Erdmetalls katalysiert wird. Eine ähnliche Reaktion ist aus Druckschrift (1) bekannt, von der die Kammer, ebenso wie die Prüfungsabteilung, als nächstem Stand der Technik ausgeht: Dort wird im Beispiel 23 Butanal mit Acetylessigsäureethylester, einer β -Dicarbonylverbindung, in Gegenwart des Austauschharzes "Amberlite IR 45" und von Essigsäure, sowie eines Hydrierkatalysators und Wasserstoff umgesetzt.

Es läßt sich errechnen, daß dabei das Reaktionsprodukt, α -Acetylhexansäureethylester, in einer Ausbeute von rund 68 % (reines Produkt) erhalten wird.

Dagegen wird dieses Produkt bei homogener Katalyse meist in wesentlich höherer Ausbeute erhalten: bei sechs der

acht Beispiele, die eine Ausbeuteberechnung erlauben, liegen die Ausbeuten zwischen etwa 85% und 93% der Theorie (Beispiel 1, 5, 7, 9, 10 und 17). Auch bei den in dieser Hinsicht ungünstigeren Beispielen 8 und 24 sind sie mit 72% und 77,5% der Theorie größer als bei der heterogen katalysierten Verfahrensweise des Beispiels 23.

Daraus ist zu entnehmen, daß die Verfahrensvariante des Standes der Technik nach (1), die dem anmeldungsgemäßen Verfahren am nächsten kommt, nämlich die heterogen katalysierte Knoevenagel-Kondensation unter hydrierenden Bedingungen nach Beispiel 23, den Nachteil geringerer Ausbeute im Vergleich mit den entsprechenden homogen katalysierten Verfahrensvarianten aufweist.

3. Demgegenüber kann die der vorliegenden Anmeldung zugrunde liegende technische Aufgabe in der Beseitigung dieses Nachteils gesehen werden und somit ein Verfahren vorzuschlagen, das die hohen Ausbeuten der homogen katalysierten Knoevenagel-Kondensation mit dem Vorteil einfacher Abtrennbarkeit heterogener Katalysatoren verbindet. Als Lösung wird ein Verfahren bereitgestellt, bei dem die im Anspruch 1 genannten heterogenen Katalysatoren verwendet werden. Die im Zuge der Knoevenagel-Kondensation durchgeführte Hydrierung erfolgt in üblicher Weise; sie kann daher nachfolgend - in Übereinstimmung mit dem Vorbringen der Beschwerdeführerin - unberücksichtigt bleiben.

Daß die bestehende technische Aufgabe auch tatsächlich gelöst wird, ist im Hinblick auf die Beispiele der Anmeldung glaubhaft (Ausbeuten zwischen 70 und 95 %).

4. Der beanspruchte Lösungsvorschlag ist keiner der angezogenen Entgegnung zu entnehmen; er ist also neu. Da die Neuheit in der angefochtenen Entscheidung nicht

bestritten wird, erübrigen sich nähere Ausführungen hierzu.

5. Es bleibt daher zu untersuchen, ob es für den Fachmann aus der Sicht der bestehenden Aufgabe aufgrund des Standes der Technik nahelag, das beanspruchte Verfahren vorzuschlagen.
- 5.1 Obwohl in der Zurückweisungsentscheidung (2), nämlich Chem. Abstracts 84 (1976) 529, Ref. No. 105 052 f, nur am Rande behandelt wurde, sei einleitend bemerkt, daß dort die Knoevenagel-Kondensation von Cyclohexanon mit Cyanessigsäureethylester in siedendem Benzol und in Gegenwart von basischem oder saurem Al_2O_3 beschrieben ist. Die Produktausbeuten lagen bei maximal knapp 12%. Selbst wenn man unterstellt, daß der Fachmann über die geringere Reaktivität von Ketonen verglichen mit Aldehyden bei solchen Kondensationsreaktionen Bescheid wußte, geht von (2) keine Anregung aus, daß sich gerade durch Verwendung von Al_2O_3 die gemäß (1) mit Austauschharz erzielbaren Ausbeuten im Sinne der anmeldungsgemäßen Aufgabe weiter verbessern lassen.
- 5.2 Nach der in der Entscheidung gleichfalls erwähnten FR-A-2 172 141 (4) kann Acetessigester mit 2-Acyloxypropionaldehyd in Gegenwart von u. a. ZnO oder Al_2O_3 eine Knoevenagel-Kondensation eingehen (ohne daß das Produkt anschließend hydriert wird); siehe z. B. (4), Anspruch 1 in Verbindung mit Seite 3, Zeilen 4 bis 7. Welche Ausbeuten bei Verwendung dieser Kondensationsmittel erzielt werden, ist in (4) nicht angegeben, so daß der Fachmann auch aus dieser Entgeghaltung keine Anregung für den beanspruchten Lösungsvorschlag erhält.
- 5.3 In (2) und (4) ist also bereits die Knoevenagel-Kondensation unter Verwendung von Metalloxiden als

heterogenen Katalysatoren beschrieben, ohne daß dies dem Fachmann eine Anregung für die beanspruchte Lösung gegeben hätte. Bei dieser Sachlage ist die Kammer der Ansicht, daß die dem Anmeldungsgegenstand ferner stehende Lehre von der heterogenen katalysierten Aldolkondensation mittels Oxiden oder Salzen Seltener Erdmetalle in flüssiger Phase unter hydrierenden Bedingungen nach (3) den Fachmann nicht veranlaßt hätte, diese Katalysatoren zur Lösung der oben genannten Aufgabe einzusetzen. Die in (3) beschriebenen hohen Ausbeuten lassen das Auftreten störender Nebenreaktionen der bei der anmeldungsgemäßen Knoevenagel-Kondensation eingesetzten Aldehyde durch Selbstkondensation geradezu erwarten. In diesem Zusammenhang kann sich die Kammer dem Argument der Vorinstanz von der Allgemeingültigkeit der Lehre nach (5) nicht anschließen; denn die dort getroffene Aussage (vgl. (5), Seite 78, Zeilen 1-3), die große Reaktionsfähigkeit der aktivierten Methylengruppe verhindere eine Aldolkondensation der Aldehyde untereinander, ist beschränkt auf die durch Ammoniak oder Stickstoffbasen homogen katalysierte Knoevenagel-Reaktion. Sie läßt keine einigermaßen zuverlässigen Vorhersagen über die Verhältnisse bei heterogener Katalyse zu, bei der Grenzflächenphänomene nicht überschaubare Einflüsse auf die Reaktivität der Ausgangsverbindungen haben können, wie auch Beispiel 23 von (1) belegt. Dies gilt auch, wenn die im beanspruchten Verfahren eingesetzten Katalysatoren, entgegen den Ausführungen der Beschwerdeführerin, nicht sauer sein sollten, was der Kammer, jedenfalls bei einigen Metalloxiden (MgO , Al_2O_3 , La_2O_3), zweifelhaft erscheint.

- 5.4. Die Kammer kommt daher zu dem Ergebnis, daß der angezogene Stand der Technik dem Fachmann keine Anregung zur Lösung der anmeldungsgemäß bestehenden Aufgabe gibt; der Gegenstand des Anspruchs 1 beruht daher auf erfinderischer Tätigkeit im Sinne von Artikel 56 EPÜ.

- 5.5 Die abhängigen Ansprüche 2 bis 4 betreffen besondere Ausführungsformen des Verfahrens gemäß Anspruch 1, die von dessen Patentfähigkeit getragen werden.
6. Die Vorinstanz hat in der angefochtenen Entscheidung am Rande auf die Unvollständigkeit der durchgeführten Recherche hingewiesen, so daß sich für die Kammer die Frage erhebt, ob nach der gebotenen Aufhebung der angefochtenen Entscheidung die Anmeldung an die Vorinstanz zur weiteren Recherche und Prüfung zurückverwiesen werden soll. Im europäischen Teilrecherchenbericht vom 02.12.1983 wird unter der Rubrik "Unvollständige Recherche" angegeben, daß eine vollständige Recherche wegen zu breiter Fassung des Ausdrucks "Organischer Rest" nicht möglich sei, und daß die Recherche daher auf die Beispiele beschränkt wurde. Immerhin wurde in fünf näher bezeichneten Sachgebieten recherchiert und dabei die Dokumente (1) bis (4) ermittelt, die dann von der Vorinstanz zusammen mit drei weiteren Dokumenten im Prüfungsverfahren berücksichtigt wurden. Unter diesen Umständen erscheint die vorliegende Anmeldung ausreichend recherchiert und geprüft, so daß eine Zurückverweisung der Sache zur weiteren Sachprüfung auch im Hinblick auf das hohe Alter der Anmeldung nicht sinnvoll erscheint.

Entscheidungsformel**Aus diesen Gründen wird entschieden:**

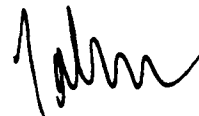
1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Die Sache wird an die Prüfungsabteilung zurückverwiesen mit der Auflage, ein Patent aufgrund der Ansprüche 1 bis 4 gemäß Hauptantrag sowie der noch anzupassenden Beschreibung zu erteilen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:



P. Martorana



K. Jahn