

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

Aktenzeichen: T 150/91

Anmeldenummer: 87 108 450.5

Veröffentlichungs-Nr.: 0 250 971

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von Alkoxiessigsäuren

Klassifikation: C25B 3/02

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

vom 17. August 1992

Anmelder: BASF Aktiengesellschaft

Stichwort:

EPÜ Artikel 56

Schlagwort: "Erfinderische Tätigkeit - nein"  
"Naheliegende Anwendung auf Alkoxyethanolen eines für primären  
Alkoholen, Di- und Tetraethylenglykol bekannten Verfahrens"



Aktenzeichen: T 150/91

**ENTSCHEIDUNG**  
der Technischen Beschwerdekammer  
vom 17. August 1992

**Beschwerdeführer:** BASF Aktiengesellschaft  
Carl-Bosch-Straße 38  
W - 6700 Ludwigshafen (DE)

**Angefochtene Entscheidung:** Entscheidung der Prüfungsabteilung 2.1.11.019 des Europäischen Patentamts vom 2. Oktober 1990, mit der die europäische Patentanmeldung Nr. 87 108 450.5 aufgrund des Artikels 97 (1) EPÜ zurückgewiesen worden ist.

**Zusammensetzung der Kammer:**

**Vorsitzender:** E. Turrini  
**Mitglieder:** C. Black  
M. Lewenton

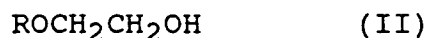
## Sachverhalt und Anträge

- I. Durch die angefochtene Entscheidung ist die Patentanmeldung aus dem Grund zurückgewiesen, daß dem Gegenstand der Ansprüche im Hinblick auf die Druckschriften US-A-4 488 944 (D1) und J. Kaulen und H.-J. Schäfer, Tetratedron, Vol. 38, Seiten 3299 bis 3308, 1982 (D2) die gemäß Artikel 52 (1) und 56 EPÜ erforderliche erfinderische Tätigkeit fehle.
- II. Die Beschwerdeführerin (Anmelderin) beantragt, die Entscheidung der Prüfungsabteilung aufzuheben und ein Patent auf der Grundlage der zurückgewiesenen Ansprüche (Hauptantrag) oder der mit der Beschwerdebegründung eingereichten Ansprüche (Hilfsantrag) zu erteilen.
- III. Der geltende Anspruch 1 gemäß Hauptantrag lautet wie folgt:

"Verfahren zur Herstellung von Alkoxyessigsäuren der allgemeinen Formel



in der R einen Alkylrest bezeichnet, dadurch gekennzeichnet, daß man eine wäßrige Lösung eines Alkoxyethanols der allgemeinen Formel



in der R die obengenannte Bedeutung hat, in Gegenwart eines elektrochemisch regenerierbaren Redoxkatalysators elektrolysiert und die Alkoxyessigsäure aus dem wäßrigen Elektrolyseaustrag isoliert."

Die Ansprüche 2 bis 9 sind von Anspruch 1 abhängig.

Nach dem Hilfsantrag werden die Wörter "unter Verwendung eines Membranverfahrens" nach "Elektrolyseaustrag" in Anspruch 1 gemäß Hauptantrag unter Streichung von Anspruch 8 eingeführt.

- IV. Die von der Beschwerdeführerin vorgebrachten Argumente zur Stützung ihrer Anträge sind im wesentlichen die folgenden:

Der mit dem Schreiben vom 6. Juli 1989 vorgelegte Versuchsbericht zeigte, daß bei der elektrochemischen Oxidation von Diethylglykol und Triethylglykol gemäß dem in D1 beschriebenen Verfahren die entsprechende Dicarbonsäuren nur in unbefriedigenden Ausbeuten erhalten würden. Es sei daher überraschend, daß nach Versuch 4, in dem Methylglykol den sonst gleichen Elektrolysebedingungen unterworfen würde, Methoxiessigsäure in so erheblich besseren Ausbeuten entstehe und auch keine Nebenreaktionen beobachtet würden. Ferner sei aus D2 bekannt, daß die elektrochemische Oxidation von Tetraethylglykol an Nickeloxydhydroxid-Anoden nur in 42 bis 50 %iger Materialausbeute zur entsprechenden Dicarbonsäure führe. Mit oxidativen Etherspaltungen und Freisetzung von Kohlendioxid sei zu rechnen.

Das in D1 beschriebene Verhalten von Diethylglykol (keine Etherspaltung und hohe Ausbeute) sei eine Ausnahme und nicht die Regel, und könne durch die Erzeugung von 1,4-Dioxian-2-ol als stabilisierendes Zwischenprodukt erklärt werden. Die Erzeugung eines solchen Zwischenprodukts könne im Falle von Alkoxiethanolen und längerkettigen Ethylenglykolen nicht stattfinden.

Bei der Reaktion gemäß dem beanspruchten Verfahren erhielt man unerwartete vorteilhafte Ergebnisse, die eine erfinderische Tätigkeit begründeten.

Ferner sei das zusätzliche Merkmal gemäß Hilfsantrag weder aus D1 noch aus D2 bekannt, noch habe es in irgendeiner Weise nahegelegen.

### Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.
2. Wie der Beschreibungseinleitung der vorliegenden Anmeldung (Seite 1, Zeilen 7 bis 26) zu entnehmen ist, sind verschiedene chemische Verfahren zur Herstellung von Alkoxyessigsäuren durch Oxidation von den entsprechenden Alkoxyethanolen bereits bekannt. Dieser Textstelle sind auch die offensichtlichen Nachteile solcher chemischen Verfahren zu entnehmen. Die der Erfindung gemäß Anspruch 1 zugrundeliegende Aufgabe ist somit darin zu sehen, ein Verfahren zu finden, das es ermöglicht, Alkoxyessigsäuren auf technisch einfache, ökonomische und umweltfreundliche Weise herzustellen, wie sie auf Seite 1, Zeilen 28 bis 30 angegeben ist.
3. Für den Fachmann ist ein elektrochemisches Verfahren als Lösung dieser Aufgabe naheliegend, weil die Vorteile eines solchen Verfahrens allgemein bekannt sind - vgl. zum Beispiel D2, Seite 3299, erster Absatz. Der mit der Aufgabe konfrontierte Fachmann wird daher Druckschriften wie D1 und D2 in Betracht ziehen, weil diese mit der elektrochemischen Oxidation von Alkoholen zu den entsprechenden Säuren zu tun haben.

4. D2 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von organischen Säuren, bei dem man eine wäßrige Lösung des entsprechenden Alkohols in Gegenwart eines elektrochemisch regenerierbaren Redoxkatalysators (Nickeloxidhydroxid) elektrolysiert und die Säure aus dem wäßrigen Elektrolyseausstrag isoliert (vgl. insbesondere die Zusammenfassung, Tabelle 1 und "Experimental"). Gemäß D2 ist das Verfahren anwendbar auf primäre Alkohole, sekundäre Alkohole,  $\alpha, \omega$ -Diolen, einschließlich Tetraethylenglykol. Für den Fachmann enthält D2 daher die Lehre der allgemeinen Anwendbarkeit des Verfahrens auf die Oxidation von Alkoholen; die zu beantwortende Frage ist deshalb, ob es für ihn naheliegend ist, das Verfahren anzuwenden, um Alkoxyethanolen, die nicht in D2 genannt sind, zu oxidieren, und somit zum Gegenstand des Anspruchs 1 zu gelangen.
5. Die Kammer sieht weder in der vorhandenen Literatur noch in der allgemeinen Kenntnis des Fachmanns einen Anlaß, der den Fachmann davon weggeführt hätte, das Verfahren gemäß D2 auch auf die Oxidation von Alkoxyethanolen anzuwenden.

Wie gesagt, ist das in D2 beschriebene Verfahren allgemein anwendbar auf Alkohole. Hierbei werden mindestens im Falle von kurzkettigen primären Alkoholen Ausbeuten von Säuren von 49 bis 91 % erreicht, wobei die Elektrolytzusammensetzung sowie der Rest R eine Rolle spielt. Mit Tetraethylenglykol werden verschiedenen Abbauprodukte beobachtet (Seite 3301, rechte Spalte, Seite 3306, rechte Spalte): eine Ausbeute von entsprechender Trioxa-Säure in Höhe von 50 % wird jedoch erreicht. Diese Ausbeute ist zwar im wesentlichen niedriger als diejenigen, die mit primären Alkoholen erreicht werden, kann im Vergleich dazu aber kaum als unbefriedigend angesehen werden.

Ferner weiß der Fachmann aus D1, daß Diethylenglykol zu der entsprechenden Diglykolsäure unter Verwendung eines elektrochemisch regenerierbaren Redoxkatalysator (hier ebenfalls Nickeloxidhydroxid) oxidiert werden kann, wobei Ausbeuten von 71 (isoliert) und 78 bis 88 % (nicht isoliert) erreicht werden (vgl. die Beispiele).

Für den Fachmann ist zwar das Verhalten von Alkoxiethanolen nicht genau von denjenigen von Tetraethylenglykol, Diethylenglykol und primären Alkoholen vorherzusagen. Ein bedeutsamer Unterschied ist aber für ihn wegen der strukturellen Ähnlichkeiten nicht zu erwarten. Es ist ihm zuzumuten, mindestens Versuche durchzuführen um herauszufinden, ob das in D1, D2 beschriebene Verfahren auch für die Oxidation von Alkoxiethanolen geeignet ist. Somit gelangt er zwangsläufig zum Gegenstand des Anspruchs 1 gemäß Hauptantrag.

6. Die Beschwerdeführerin macht unter Hinweis auf den am 6. Juli 1989 eingegangenen Versuchsbericht geltend, daß die Ausbeute von Methoxiessigsäuren bei der Oxidation von Methoxyethanol überraschend hoch sei, was ein Beweisanzeichen für eine erfinderische Tätigkeit sei. Die Kammer kann diese Auffassung aus folgenden Gründen nicht teilen. Die Entscheidungen T 199/84 und T 132/86 befassen sich mit der Frage solcher Beweisanzeichen, zwar in bezug auf eine Modifizierung eines bekannten Verfahrens eher als die Anwendung eines bekannten Verfahrens auf ein anderes Ausgangsmaterial; es gelten aber die gleichen Überlegungen. Punkt 5.4, erster Absatz der Entscheidungsgründe von T 199/84, lautet wie folgt: "Es ist unstrittig, daß der Fachmann auf dem Gebiet der Chemie mangels theoretischer Erkenntnisse und mangels gesicherter wissenschaftlicher Zusammenhänge in der Regel keine verlässlichen quantitativen Voraussagen über Ausbeuten

machen kann. Vielmehr ist er diesbezüglich regelmäßig auf das Experiment angewiesen".

Zwar weiß der Fachmann, daß Etherbindungen unter gewissen Umständen zu Spaltung neigen, wobei mit der Bildung von Nebenprodukten zu rechnen ist. Es besteht aber kein Grund zu befürchten, daß eine Etherspaltung im Falle von Alkoxyethanolen wahrscheinlicher ist als im Falle von Di- und Tetraethylenglykol. Vielmehr ist eine Ausbeute vergleichbar mit der von Diethylenglykol zu erwarten, weil nur eine Ethergruppe vorhanden ist. Der Fachmann weiß auch, daß der Alkoxy-Rest sonst relativ unreaktiv ist, so daß eine Verhaltensweise eher wie die der primären Alkohole möglich wäre. Diese verschiedenen Möglichkeiten können erst durch Routineversuche aufgeklärt werden, und wenn der Fachmann nach Durchführung solcher Versuche angenehm überrascht ist, kann dieser Umstand nicht die erfinderische Tätigkeit dieses Verfahrens begründen. Die Durchführung dieser Versuche ist jedenfalls für ihn naheliegend, wie in Absatz 5 oben erläutert ist.

7. Der Argumentation der Beschwerdeführerin, daß die gemäß D1 relativ hohen Ausbeuten bei der Oxidation von Diethylenglykol eine Ausnahme seien, kann auch nicht gefolgt werden. Zunächst ist festzustellen, daß die vorgeschlagene Erklärung der US-A-4 600 478 zu entnehmen ist, die erst nach dem Prioritätsdatum der vorliegenden Anmeldung veröffentlicht wurde. Eine solche mögliche Erklärung des Reaktionsmechanismus war dem Fachmann am Prioritätstag nicht zugänglich. Vielmehr wußte er aus D2, Seite 3299, daß im Falle von primären Alkoholen ein  $\alpha$ -Hydroxy-Radikal als Zwischenprodukt in der die Reaktionsgeschwindigkeit bestimmenden Stufe erzeugt wird, das sogleich zu Carboxylat oxidiert wird. Gemäß den Angaben auf Seite 3302 werden ferner keine oder

geringfügige Mengen von Aldehyden als Zwischenprodukte beobachtet.

8. Die Kammer hat auch die Angaben auf Seite 2, Zeilen 5 bis 9 sowie Seite 3, Zeilen 38 bis 40 der vorliegenden Beschreibung in Betracht gezogen. Die Tatsache, daß frühere Versuche, Methoxyethanol an Platin-Anoden oder Graphit-Anoden elektrochemisch zu oxidieren, gescheitert sind, wird den Fachmann nicht davon abhalten, andere elektrotechnische Verfahren auszuschauen. Er weiß nämlich aus D2, Seite 3299, linke Spalte, daß die elektrochemische Oxidation von Alkoholen an Platin- oder Graphit-Elektroden wegen der notwendigen Oxidation-Potentialen unbefriedigend ist, und aus D2, Seite 3304, rechte Spalte, daß die Oxidation von Alkoholen an Nickelhydroxidelektroden besser ist als bei anderen bekannten elektrotechnischen Verfahren.

Was die Aktivierung der Elektroden betrifft, ist zunächst festzustellen, daß das Verfahren gemäß Anspruch 1 einen elektrochemisch regenerierbaren Redoxkatalysator braucht, deshalb eine aktivierte Elektrode im Sinne von D1, D2 und der vorliegenden Anmeldung. Ob die Aktivierung der Elektrode vor oder während des Verfahrens stattfindet, scheint keine bedeutende Rolle zu spielen. Auch der Angabe auf Seite 3301, linke Spalte, von D2, nämlich "Before each electrolysis, the nickel net should be activated by deposition of a nickel hydroxide surface layer which considerably enhances the reactivity of the anode" ist zu entnehmen, daß eine Voraktivierung der Elektrode fakultativ ist.

9. Nach alledem beruht der Gegenstand des Anspruchs 1 gemäß Hauptantrag nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit.

10. Die Merkmale der abhängigen Ansprüche 2 bis 7 gemäß Hauptantrag sind entweder aus D1 und/oder D2 bekannt oder durch die dort angegebenen Reaktionsparameter ableitbar. Ferner waren am Prioritätstag der vorliegenden Anmeldung die Merkmale der Ansprüche 8 und 9, nämlich die Verwendung von Membranen in Trennverfahren, insbesondere von bipolaren Membranen in Elektrodialyse, schon geläufig. Auch eine Wiederverwertung der getrennten wäßrigen-alkalischen Lösung gemäß einem weiteren Merkmal des Anspruchs 9 ist für den Fachmann naheliegend. Somit fügen die Merkmale der Ansprüche 2 bis 9 nichts Erfindarisches zum Gegenstand des Anspruchs 1 gemäß Hauptantrag hinzu.
11. Weil sich Anspruch 1 gemäß Hilfsantrag aus einer Kombination der Ansprüche 1 und 8 gemäß Hauptantrag ergibt, beruht sein Gegenstand ebenfalls auf keiner erfinderischen Tätigkeit.
12. Da in dem Beschwerdeverfahren keine neuen Tatsachen oder Beweismittel vorgebracht worden sind, und kein Antrag auf die Anberaumung einer mündlichen Verhandlung eingegangen ist, konnte die Kammer die Entscheidung treffen, ohne zunächst einen Zwischenbescheid zu erlassen.

#### Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

Die Beschwerde wird zurückgewiesen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

E. Görgmaier

E. Turrini