

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

Aktenzeichen: T 370/92 - 3.3.3
Anmeldenummer: 86 903 379.5
Veröffentlichungs-Nr.: 0 228 397
Klassifikation: C08F 2/32
Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von konzentrierten
Emulsionspolymerisaten

E N T S C H E I D U N G
vom 28. Mai 1993

Anmelder: -
Patentinhaber: Chemische Fabrik Stockhausen GmbH
Einsprechender: SNF Floerger
Stichwort: -
EPÜ: Art. 54, 56
Schlagwort: "Neuheit (ja)" - "Erfinderische Tätigkeit (ja)"

Leitsatz
Orientierungssatz



Aktenzeichen: T 370/92 - 3.3.3

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.3
vom 28. Mai 1993

Beschwerdeführer: SNF Floerger
(Einsprechender) 41, Rue Jean-Huss
F - 42028 Saint-Etienne Cedex (FR)

Vertreter: Maiwald, Walter, Dr.
Strasse, Maiwald, Meys, Stach & Vonnemann,
Balanstraße 55
D - 81539 München (DE)

Beschwerdegegner: Chemische Fabrik Stockhausen GmbH
(Patentinhaber) Bäckerpfad 25
D - 47805 Krefeld (DE)

Vertreter: Klöpsch, Gerard, Dr.-Ing.
Patentanwalt
An Groß St. Martin 6
D - 50667 Köln (DE)

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Einspruchsabteilung des
Europäischen Patentamts vom 4. Februar 1992,
zur Post gegeben am 26. Februar 1992, mit der
der Einspruch gegen das europäische Patent
Nr. 0 228 397 aufgrund des Artikels 102 (2)
EPÜ zurückgewiesen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: F. Antony
Mitglieder: C. Gérardin
M. Aúz Castro

Sachverhalt und Anträge

- I. Auf die europäische Patentanmeldung Nr. 86 903 379.5, die am 19. Juni 1986 unter Inanspruchnahme der Priorität aus der Voranmeldung vom 22. Juni 1985 in Deutschland angemeldet worden war, ist am 6. September 1989 das europäische Patent Nr. 228 397 auf der Grundlage von 6 Ansprüchen erteilt worden. Anspruch 1 lautet:

"Verfahren zur Herstellung von konzentrierten Dispersionen wasserlöslicher oder in Wasser quellbarer Emulsionspolymerisate durch Polymerisation wenigstens eines wasserlöslichen Monomeren in einer W/Ö-Dispersion mittels Polymerisationsinitiatoren, gegebenenfalls in Gegenwart von bi- oder multifunktionellen Vinyl- oder Allylverbindungen, dadurch gekennzeichnet, daß eine W/Ö-Dispersion des Ausgangsmonomeren unter Rühren und unter Steuerung der Polymerisation durch die Wahl geeigneter Temperatur- und Druckbedingungen derart polymerisiert wird, daß die Polymerisationswärme als Verdampfungswärme bei der destillativen Entfernung von im Reaktionsgemisch enthaltenem Wasser abgeführt wird, wodurch sowohl Polymerisationswärme als auch Wasser aus der W/Ö-Polymerisat-Dispersion abgeführt werden."

Die abhängigen Ansprüche 2 bis 6 sind auf besondere Ausgestaltungen des Verfahrens nach dem Hauptanspruch gerichtet.

- II. Gegen die Erteilung des europäischen Patents ist am 6. Juni 1990 Einspruch eingelegt und der Widerruf des Patents in vollem Umfang wegen mangelnder Neuheit und erfinderischer Tätigkeit beantragt worden (Art. 100 a) EPÜ). Zur Stützung ihres Vorbringens hat die Einsprechende u. a. auf folgende Dokumente verwiesen:

(1) DE-B-1 300 244,

(2) DE-A-2 064 101,

(3) US-A-4 154 910,

(4) DE-A-3 224 994,

(5) DE-A-2 419 764,

(6) DE-A-2 926 103.

III. Durch Entscheidung vom 4. Februar 1992, mit schriftlicher Begründung zur Post gegeben am 26. Februar 1992, hat die Einspruchsabteilung den Einspruch zurückgewiesen. In der angefochtenen Entscheidung wird zunächst festgestellt, der Gegenstand des Streitpatents sei neu, insbesondere gegenüber Dokument (1), da weder die dort beschriebenen allgemeinen Verfahrensbedingungen, noch die spezifischen Verfahrensschritte gemäß Vergleichsbeispiel 2 einem Polymerisationsverfahren im Sinne des Streitpatents entsprächen. Das beanspruchte Verfahren sei auch erfinderisch, da zum einen die Entgegenhaltungen (1) bis (3) andere Polymerisationstypen betreffen und somit nicht relevant seien, und zum anderen die Druckschriften (4) bis (6) keinen Hinweis auf Entfernung von Wasser während der Polymerisation enthielten.

IV. Gegen die Entscheidung der Einspruchsabteilung hat die Beschwerdeführerin (Einsprechende) am 24. April 1992 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde erhoben und hierzu am 26. Juni 1992 eine Begründung eingereicht.

In dieser Begründung wurde zunächst erneut mangelnde Neuheit geltend gemacht. Einerseits werde im Vergleichsbeispiel 2 des Dokuments (1) die allgemeine Lehre dieser Entgegenhaltung ausdrücklich auf Emulsionspolymerisationen übertragen; daraus ergäben sich Verfahrensbedingungen, die allen Merkmalen des Verfahrens gemäß

Streitpatent genügten. Andererseits gehe aus zwei neu genannten Dokumenten,

(7) Stanford Research Institute, Report No. 99, Juni 1976, Seiten 132 bis 142, und

(8) US-A-4 037 040,

hervor, daß Emulsionspolymerisation von Wasser-in-Öl-Dispersionen derart durchgeführt werden könnten, daß während der einstufigen Reaktion die Reaktionswärme durch Abdestillieren des Lösungsmittels aus dem Reaktionssystem abgeführt werde.

Daß dies für den Fachmann üblich sei, sei auch den Dokumenten (1) bis (6) zu entnehmen, so daß Stabilitätsprobleme bei der Emulsionspolymerisation nicht zu befürchten gewesen seien. Somit erschöpfe sich die dem Streitpatent zugrundeliegende Aufgabe in einer Verfahrensführung, die ohne Störungen hohe Ausbeuten bei hoher Qualität mit möglichst geringem Aufwand liefere; ein solcher Optimierungsversuch beruhe nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit.

- V. Demgegenüber unterstrich die Beschwerdegegnerin (Patentinhaberin), die allgemeinen Verfahrensmerkmale im Dokument (1) könnten nicht auf eine Emulsionspolymerisation hindeuten. Außerdem finde die Abtrennung des Wassers nicht unter Ausnutzung der Reaktionswärme statt, sondern durch azeotrope Destillation nach Beendigung der Polymerisation. Die neu genannten Dokumente (7) und (8) seien ebensowenig neuheitsschädlich wie die früher genannten, da sich das erste lediglich auf Sachverhalte allgemeiner Art beschränke und das zweite im Gegensatz zum Streitpatent zeige, daß beim Abtrennen von Wasser während der Polymerisation eine Zerstörung der W/Ö-Dispersion auftrete. Was die erfinderische Tätigkeit anbelange, sei den Entgegenhaltungen (1) bis (6) weder

einzelnen, noch in irgendeiner Kombination zu entnehmen, wie eine solche stabile Dispersion überhaupt zu erhalten sei.

- VI. Die Beschwerdeführerin beantragt die Aufhebung der angefochtenen Entscheidung und den Widerruf des europäischen Patents.

Die Beschwerdegegnerin beantragt die Zurückweisung der Beschwerde.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 sowie Regel 64 EPÜ; sie ist zulässig.
2. Aus Punkt IV des Sachverhalts geht hervor, daß die von der Beschwerdeführerin herangezogenen Dokumente (7) und (8) erst in der Beschwerdebegründung, d. h. zwei Jahre nach Ablauf der Einspruchsfrist gemäß Artikel 99 (1) EPÜ, genannt worden sind. Die Relevanzprüfung dieser neuen Entgegenhaltungen durch die Kammer hat ergeben, daß deren Lehre nicht über das hinaus geht, was schon aus den übrigen Entgegenhaltungen bekannt war; beide werden daher im folgenden unberücksichtigt bleiben (Art. 114 (2) EPÜ).
3. Das Streitpatent betrifft ein Verfahren zur Herstellung von konzentrierten Emulsionspolymerisaten. Dieses Verfahren, wie im Hauptanspruch definiert, wird weder von der allgemeinen Lehre des Dokuments (1), noch von der spezifischen Ausführungsform gemäß Vergleichsbeispiel 2 neuheitsschädlich vorweggenommen.
 - 3.1 Schon aus Anspruch 1 dieser Entgegenhaltung geht hervor, daß das dortige Verfahren nicht auf die Herstellung einer konzentrierten Dispersion gerichtet ist, sondern auf die Herstellung gekörnter, wasserlöslicher Polymerisate und

Mischpolymerisate. Hierzu wird ein Gemisch aus einer 30 - bis 80 gew.-%igen wäßrigen Lösung äthylenisch ungesättigter, wasserlöslicher Monomere und einer wasserunlöslichen organischen Flüssigkeit, die mit Wasser ein azeotropes Gemisch bildet, in Gegenwart eines Polymerisationskatalysators und eines Emulgators bis zum Siedepunkt erhitzt, wobei der Sauerstoff entfernt wird. Das Erhitzen und das Abtrennen des Sauerstoffs werden so lange fortgesetzt, bis sich innerhalb des Gemisches zwei deutlich getrennte Schichten bilden und die Polymerisation in der wäßrigen Schicht eintritt. Durch heftiges Rühren wird dann das Polymerisationsprodukt in Partikel zerteilt. Anschließend wird der Wassergehalt des Polymerisats durch azeotrope Destillation auf 0 bis 28 Gew.-% gebracht.

Gegenüber dem im Streitpatent beanspruchten Verfahren weist dieses Verfahren drei wesentliche Unterschiede auf. Der erste bezieht sich auf die Polymerisationsreaktion selbst: während im Streitpatent die Polymerisation in Emulsion stattfindet, wird in der Entgegenhaltung in der wäßrigen Phase polymerisiert; wenngleich hier die Anwesenheit des oberflächenaktiven Mittels die Bildung einer Emulsion hervorrufen kann, muß letztere vor der Polymerisation brechen, damit sich zwei deutlich voneinander getrennte Schichten bilden können (Spalte 2, Zeilen 61 bis 64; Spalte 4, Zeilen 22 bis 26; Beispiele 1, 2, 4 bis 6). Der zweite Unterschied ist die Zerteilung des Polymerisats durch kräftiges Rühren, wodurch Teilchen mit engerer Durchmesser-Verteilung entstehen (Spalte 2, Zeile 66 bis Spalte 3, Zeile 2; Beispiele 1, 4 und 5); dieser Verfahrensschritt stellt eine Maßnahme dar, die dem Streitpatent fremd ist. Der dritte Unterschied betrifft das azeotrope Gemisch: während in Dokument (1) das azeotrope Gemisch aus Wasser und organischem Lösungsmittel nach Beendigung der Polymerisation entfernt wird (Spalte 3, Zeilen 2 bis 9; Beispiele 1, 2, 4 bis 6), wird im Streitpatent im

wesentlichen nur Wasser, und zwar während der Polymerisation abdestilliert, wobei die Temperatur im wesentlichen konstant bleibt.

Wie die Beschwerdegegnerin vorgetragen hat (Eingaben vom 16. Dezember 1991, Seite 2, Absatz 5 bis Seite 3, Absatz 2 und vom 19. November 1992, Seite 2, Absätze 2 bis 4), läßt die Verfahrensführung gemäß Dokument (1), d. h. (i) Erhitzen der gebildeten Emulsion bis zu deren Aufspaltung, (ii) Polymerisation in wäßriger Schicht, (iii) Zerkleinerung des Polymerisats, und (iv) azeotrope Destillation nach Beendigung der Polymerisation, erkennen, daß dort keine Emulsionspolymerisation wie im Streitpatent vorliegt, sondern eine Suspensionspolymerisation, bei der die Polymerisate gekörnt anfallen. Die gleiche Feststellung ist übrigens den Ausführungsbeispielen 1 bis 6 zu entnehmen.

- 3.2 Die Ausführungsform gemäß Vergleichsbeispiel 2 von Dokument (1), wonach die obigen allgemeinen Verfahrensmerkmale auf eine Emulsionspolymerisation übertragen werden, ist ebensowenig neuheitsschädlich. Dort wird nämlich angegeben, daß (a) 40 % Emulgator verwendet, (b) Toluol als hydrophobe Phase/organisches Lösungsmittel eingesetzt und im übrigen (c) die gleichen Verfahrensschritte wie bei der Bildung der Verbindung (1), d. h. wie im Ausführungsbeispiel 1, eingehalten werden (Spalte 10, Zeilen 55 bis 64). Wenngleich im Ausführungsbeispiel 1 Benzol und Wasser schon beim Siedepunkt des Systems herausdestillieren, so wird der größte Teil Wasser, nämlich 80 %, erst nach Beendigung der Polymerisation durch azeotrope Destillation entfernt (Spalte 5, Zeilen 5 bis 21). Wie aus der Beschreibung der Entgegenhaltung hervorgeht, spielt dort die organische Flüssigkeit die gleiche Rolle wie das Wasser im Streitpatent, denn es ist ihre Aufgabe, die Reaktionswärme von dem sich bildenden Polymerisat zu entfernen (Spalte 3, Zeilen 31 bis 35). Ein weiterer Unterschied gegenüber dem

Streitpatent ist die Anwesenheit von Harnstoff in der wäßrigen Phase, der in sämtlichen Ausführungsbeispielen des bekannten Verfahrens vorhanden ist; arbeitet man nach dieser bevorzugten Ausführungsform (Spalte 2, Zeilen 31 bis 37), so enthält die wäßrige Phase 8,8 % Harnstoff, bezogen auf das Gewicht des Acrylamids, was dem beanspruchten Verfahren nicht entspricht. Aufgrund dieser Unterschiede kann die Ausführungsform gemäß Vergleichsbeispiel 2 den Gegenstand des Streitpatents nicht neuheitsschädlich vorwegnehmen.

3.3 Aus diesen Gründen kann die Neuheit des beanspruchten Verfahrens sowohl gegenüber der allgemeinen Lehre des Dokuments (1), als auch gegenüber der spezifischen Ausführungsform gemäß Vergleichsbeispiel 2 anerkannt werden.

4. Wie die Einspruchsabteilung sieht auch die Kammer Vergleichsbeispiel 2 von Dokument (1) als den nächsten Stand der Technik an. Dort wird Acrylamid in Anwesenheit von Harnstoff einer Emulsionspolymerisation unterworfen, wobei die bei der Polymerisationsreaktion freiwerdende Wärme zum größten Teil von der organischen Flüssigkeit, die als Wärmeleitmittel fungiert, abgeführt wird (Spalte 2, Zeilen 64 bis 66; Ausführungsbeispiel 1; Spalte 10, Zeilen 55 bis 64). Aus der in Spalte 12 enthaltenen Tabelle geht hervor, daß das erhaltene Polymerisat eine sehr hohe Absetzzeit sowie eine besonders niedrige Viskosität aufweist, die es als Flockungs-, Retentions- und Entwässerungshilfsmittel ungeeignet machen.

Aufgrund dieser Unzulänglichkeiten kann die dem Streitpatent zugrundeliegende Aufgabe darin gesehen werden, ein Polymerisationsverfahren anzugeben, womit Polymerisate mit im Hinblick auf diese Verwendungen verbesserten Eigenschaften hergestellt werden können.

Diese Aufgabe wird - vereinfacht dargestellt - dadurch gelöst, daß eine Wasser-in-Öl-Dispersion des Ausgangsmonomeren ohne Harnstoff unter Rühren und unter Steuerung der Polymerisation durch die Wahl geeigneter Temperatur- und Druckbedingungen derart polymerisiert wird, daß die Polymerisationswärme als Verdampfungswärme bei der destillativen Entfernung von im Reaktionsgemisch enthaltenem Wasser abgeführt wird.

Aus den Beispielen des Streitpatents geht hervor, daß dadurch stabile, hochkonzentrierte Emulsionspolymerisate entstehen, deren 0,5- oder 1 %-ige Lösungen in Wasser eine hohe Viskosität aufweisen und die für die Wasser- und Abwasser-Aufbereitung besonders geeignet sind. Somit stellt der beanspruchte Lösungsvorschlag eine glaubhafte Lösung der oben genannten Aufgabe dar.

5. Es bleibt noch zu untersuchen, ob dieses Verfahren auf einer erfinderischen Tätigkeit beruht.

Vergleichsbeispiel 2 in Dokument (1), das als der nächste Stand der Technik anzusehen ist, weicht von der allgemeinen Lehre dieser Entgegenhaltung ab, die auf eine Dispersionspolymerisation gerichtet ist, indem es eine Emulsionspolymerisation beschreibt. Da sonst von diesem Polymerisationstyp an keiner Stelle die Rede ist, kann der Fachmann dieser Druckschrift keinen Hinweis für die Lösung der bestehenden technischen Aufgabe entnehmen.

Der gleiche Schluß ergibt sich aus den Dokumenten (2) und (3), die eine Suspensions- bzw. Lösungspolymerisation beschreiben und somit für die Lösung dieser Aufgabe ebensowenig relevant sind.

Was die Dokumente (4) bis (6) anbelangt, so muß zunächst festgestellt werden, daß sie nicht unabhängige Entgegenhaltungen sind, indem in der Einleitung des Dokuments (4) auf die Nachteile der Verfahren gemäß Dokumenten (5) und

(6), insbesondere auf die Schwierigkeiten, Emulsionen im technischen Maßstab zu konzentrieren, hingewiesen wird. So kann dieser Einleitung entnommen werden (Seite 1, Absatz 2 bis Seite 2, Absatz 3), daß aus dem Reaktionsgemisch einer umgekehrten Emulsionspolymerisation erstens das Wasser durch azeotrope Destillation entfernt werden kann, wodurch eine Dispersion mit einem relativ niedrigen Polymergehalt entsteht (Dokument (5)), und zweitens eine höhere Konzentration nur im Labormaßstab in einem Rotationsverdampfer zu erzielen ist (Dokument (6)). Die Lehre des Dokuments (4) besteht darin, die Wasser-in-Öl-Emulsion in einem Strömungsrohr mit mindestens zwei Phasenströmen zu einer nichtwässrigen Polymerdispersion aufzuarbeiten (Anspruch 1). Dabei wird eine bereits fertige Polymeremulsion nach der Polymerisation einer speziellen Wärme- und Unterdruckbehandlung in einer speziellen Apparatur unterzogen (Seite 6, Zeile 1 bis Seite 7, Zeile 7 in Verbindung mit Figur 1); ein solcher Verfahrensschritt kann ein Abdestillieren von Wasser während der Polymerisation nicht nahelegen.

Aus diesen Gründen können die von der Beschwerdeführerin herangezogenen Dokumente den beanspruchten Lösungsvorschlag nicht nahelegen, der somit auf einer erfinderischen Tätigkeit beruht.

6. Diese Überlegungen gelten gleichermaßen für die abhängigen Ansprüche 2 bis 6, die auf besondere Ausführungsformen des Verfahrens gemäß Anspruch 1 gerichtet sind und von dessen Patentfähigkeit getragen werden.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

Die Beschwerde wird zurückgewiesen.

Die Geschäftsstellenbeamtin:

Der Vorsitzende:

E. Görgmaier

F. Antony