

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 12. Januar 1994

Beschwerde-Aktenzeichen: T 0506/93 - 3.4.2

Anmeldenummer: 88908671.6

Veröffentlichungsnummer: 0386027

IPC: G01N 27/56

Verfahrenssprache: DE

Bezeichnung der Erfindung:
Elektrochemischer Meßfühler

Anmelder:
Robert Bosch GmbH

Einsprechender:
-

Stichwort:
-

Relevante Rechtsnormen:
EPÜ Art. 56

Schlagwort:
"Erfinderische Tätigkeit - nach Änderung ja"

Zitierte Entscheidungen:
-

Orientierungssatz:



Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Office européen
des brevets

Beschwerdekammern

Boards of Appeal

Chambres de recours

Aktenzeichen: T 0506/93 - 3.4.2

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.4.2
vom 12. Januar 1994

Beschwerdeführer: Robert Bosch GmbH
Postfach 30 02 20
D - 70442 Stuttgart (DE)

Vertreter: -

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Prüfungsabteilung des Europäischen Patentamts vom 15. Dezember 1992, zur Post gegeben am 12. Januar 1993, mit der die europäische Patentanmeldung Nr. 88908671.6 aufgrund des Artikels 97 (1) EPÜ zurückgewiesen worden ist.

Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: E. Turrini
Mitglieder: M. Chomentowski
B.J. Schachenmann

Sachverhalt und Anträge

- I. Die europäische Patentanmeldung Nr. 88 908 671.6 (Veröffentlichungs-Nr. 0 386 027) wurde wegen mangelnder erfinderischer Tätigkeit zurückgewiesen.

Die Entscheidung der Prüfungsabteilung wurde damit begründet, daß im Hinblick auf die aus

D1 = DE-A-2 852 647

bekannte Verwendung von Mischoxidpulvern zur Herstellung einer keramischen Schutzschicht aus insbesondere einer Aluminiumoxid-Matrix mit darin eingelagerten Zirkondioxid-Partikeln auf einem elektrochemischen Meßfühler für die Bestimmung des Sauerstoffgehaltes in Gasen, die Benutzung von an sich bekannten physikalisch-chemischen Prozeßen zur Gewinnung der Mischoxidpulver wie insbesondere Kofällung oder Vereinigung von Suspensionen getrennt gefällter Komponenten, für die Herstellung von Schutzschichten mit einer homogenen Porenverteilung nahegelegen habe.

- II. Gegen diese Entscheidung hat die Beschwerdeführerin (Patentanmelderin) Beschwerde eingelegt.
- III. Während der mündlichen Verhandlung vom 12. Januar 1994 hat die Beschwerdeführerin einen neuen Satz von Ansprüchen eingereicht und beantragt, die angefochtene Entscheidung aufzuheben und ein Patent mit diesen Ansprüchen, einer daran anzupassenden Beschreibung und den ursprünglichen Figuren zu erteilen.

IV. Anspruch 1 hat folgenden Wortlaut:

"1. Verfahren zur Herstellung einer porösen keramischen Schutzschicht aus einer Al_2O_3 -Matrix mit darin eingelagerten ZrO_2 -Partikeln auf einen Festelektrolytkörper eines elektrochemischen Meßfühlers zur Bestimmung des Sauerstoffgehalts in Gasen, bei dem die Al_2O_3 -Matrix mit den eingelagerten ZrO_2 -Partikeln durch Sintern eines von Oxidpulvern aus Al_2O_3 und ZrO_2 und gegebenenfalls weiteren Beimischungen hergestellt wird, dadurch gekennzeichnet, daß durch eines der an sich bekannten Gewinnungsverfahren Kofällen oder Vereinigung und Mischung von Suspensionen mit getrennt gefällten Komponenten eine Mischung der Oxidpulver erzeugt wird, daß das Al_2O_3 -Pulver in der Mischung 60 bis 85 Gew.-% ausmacht, daß aus dem gewonnenen Mischoxidpulver eine Suspension hergestellt wird, daß die Suspension auf den Festelektrolytkörper in an sich bekannter Weise aufgetragen wird, und daß anschließend die durch die aufgetragene Suspension erzeugte Schutzschicht mit dem Festelektrolytkörper ko-gesintert wird."

Die Ansprüche 2 bis 4 sind abhängige Ansprüche.

V. Die Beschwerdeführerin hat ihren Antrag auf folgende Argumente gestützt:

Das aus D1 bekannte Verfahren betrifft die Herstellung von Schutzschichten, die entweder nur eine Komponente wie z. B. Al_2O_3 oder ZrO_2 oder eine Mischung aus z. B. Al_2O_3 und ZrO_2 enthalten; im Falle einer Mischung werden aber nur Pulver der Komponenten gemischt, um die aufzutragende Suspension herzustellen, wie es zum Zeitpunkt der Priorität der vorliegenden Anmeldung üblich war. Ein Problem der durch das bekannte Verfahren hergestellten Schutzschichten ist, daß das Resultat der Mischung unvollständig sein kann, so daß Aggregate einzelner

Komponenten vorkommen können, was die homogene Verteilung der Poren und daher auch sowohl die Haftfestigkeit der Schutzschicht auf dem Meßfühler als auch die Diffusion des Gases durch die Schutzschicht beeinträchtigen kann.

Durch die Gewinnungsverfahren Kofällen oder Vereinigung und Mischung von Suspensionen mit getrennt gefällten Komponenten wird eine Mischung der Oxidpulver erzeugt, die als Ausgangsmaterial für die eigentliche Herstellung der aufzutragenden Suspension benutzt wird und die eine homogenere Porenverteilung ergibt. Dem Stand der Technik ist kein Hinweis zu entnehmen, daß die durch das Verfahren von D1 hergestellten Schutzschichten Nachteile haben. Daher hat der Verzicht auf die üblichen Mischmethoden und ein Aufgreifen anderer, allgemein bekannter Methoden, die aber nicht dem einschlägigen Stand der Technik angehören, sogar beim Versuch die Porenverteilung zu verbessern, nicht nahegelegen.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde ist zulässig.
2. *Gewährbarkeit der Änderungen*
 - 2.1 Der vorliegende Anspruch 1 betrifft ein Verfahren und ergibt sich aus der Kombination der ursprünglichen Ansprüche 1, 2, 3 und 5 bis 8; die in diesen rückbezogenen Ansprüchen 2, 3 und 5 bis 8 erwähnten Merkmale des Herstellungsverfahrens der Vorrichtung des ursprünglichen Anspruchs 1 wurden gemäß weiteren Angaben in der ursprünglichen Beschreibung (siehe Seite 4, dritter Absatz, sechste bis neunte Zeile; Seite 5, erste bis zwölfte Zeile) beschränkt auf die Benutzung von Al_2O_3 und ZrO_2 und gegebenenfalls weiteren Beimischungen für die Matrix der porösen keramischen Schutzschicht, mit

einem Al_2O_3 -Pulver-Anteil in der Mischung von 60 bis 85 Gew.-%, und auf ein Gewinnungsverfahren zum Erzeugen einer Mischung der Oxidpulver, das ausschließlich entweder aus Kofällung oder aus Vereinigung und Mischung von Suspensionen mit getrennt gefällten Komponenten besteht. In Übereinstimmung mit der ursprünglichen Beschreibung (siehe Seite 6, dritter Absatz) ist außerdem das vorliegende Herstellungsverfahren einer keramischen Schutzschicht nicht auf die Bildung der Schicht auf Elektroden beschränkt, sondern betrifft auch die Deckung von größeren Bereichen des Sondensteins bzw. des planaren Sensorelementes des Meßfühlers. Daher wurde die europäische Patentanmeldung nicht in der Weise geändert, daß ihr Gegenstand über den Inhalt der Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht (Art. 123 (2) EPÜ).

3. Klarheit

- 3.1 Für das beanspruchte Herstellungsverfahren der porösen keramischen Schutzschicht aus einer Al_2O_3 -Matrix mit darin eingelagerten ZrO_2 -Partikeln und gegebenenfalls weiteren Beimischungen wird eine Mischung aus Pulveroxiden verwendet, die ausschließlich durch eines der an sich bekannten Gewinnungsverfahren Kofällen oder Vereinigung und Mischung von Suspensionen mit getrennt gefällten Komponenten erzeugt wird. Beide Gewinnungsverfahren werden in der Beschreibung (siehe insbesondere Seite 5, dritter Absatz, erste bis zwölfte Zeile) angegeben. Dem vorliegenden Anspruch 1 ist zu entnehmen, daß zuerst durch eines der zwei erwähnten Gewinnungsverfahren eine Mischung der Oxidpulver erzeugt wird und dann aus dem gewonnenen Mischoxidpulver eine Suspension hergestellt wird, die auf den Festelektrolytkörper aufgetragen wird, wobei die Mischung beim Gewinnungsverfahren der Oxide stattfindet und die Suspension, die aufgetragen wird, keine weitere Mischung braucht.

Da das Verfahren durch den vorliegenden Anspruch 1 eindeutig definiert ist, ist er klar im Sinne von Artikel 84 EPÜ.

- 3.2 Im Hinblick auf weitere Verfahren, die in der vorliegenden Beschreibung erwähnt sind, ist folgendes zu bemerken: die Nennung von z. B. anderen Materialien, wie Mg-Spinell anstatt Al_2O_3 , oder von anderen Gewinnungsverfahren, bei denen das Verfahren von einer Mischung aus einer Al_2O_3 -Suspension und einer Zr-Hydroxidsuspension ausgeht, wobei jedoch nicht eindeutig feststeht, ob die Al_2O_3 -Suspension durch separates Fällern erzeugt wurde, oder bei denen eine Al_2O_3 -Suspension mit einer Zirkonoxychlorid-Lösung vereinigt und in der erhaltenen Mischung das Zirkonoxychlorid zu Zirkonhydroxid hydrolisiert wird, oder bei denen eine weitere anerkannte Gewinnungsmethode angewandt wird, wobei anstelle eines Ba-, Sr- Ca- oder Mg-Salzes ein entsprechendes Al-Salz verwendet wird, stimmt mit den Angaben des vorliegenden Anspruchs 1 nicht überein. Das gleiche gilt für Schutzschichten, die als Pulver durch Plasmaspritztechnik auf die Vorrichtung aufgetragen werden, oder für Beispiele, die nicht eindeutig durch das beanspruchte Verfahren hergestellt werden oder Angaben über das Al_2O_3 -Gehalt der Schicht enthalten, die den beanspruchten nicht entsprechen. Daher sind diese weiteren Verfahren oder Merkmale aus der Beschreibung zu streichen.

4. *Neuheit*

- 4.1 Ein Verfahren zur Herstellung einer porösen keramischen Schutzschicht ist aus D1 (siehe Seite 5 bis Seite 6, erster Absatz; Seite 6, letzter Absatz bis Seite 7, erster Absatz; Seite 8, zweiter Absatz bis Seite 9, erster Absatz; Seite 10, erster Absatz; Seite 11, Beispiele b) und c); siehe auch die Ansprüche 1, 2, 6, 15 und 16) bekannt; eine der so hergestellten Schutz-

schichten besteht aus einer Al_2O_3 -Matrix mit darin eingelagerten ZrO_2 -Partikeln auf einem Festelektrolytkörper eines elektrochemischen Meßfühlers zur Bestimmung des Sauerstoffgehalts in Gasen; beim bekannten Verfahren wird die Al_2O_3 -Matrix mit den eingelagerten ZrO_2 -Partikeln durch Sintern einer Mischung von Oxidpulvern aus Al_2O_3 und ZrO_2 und gegebenenfalls weiteren Beimischungen hergestellt.

Dem vorliegenden Verfahren gegenüber ist D1 nicht zu entnehmen, daß die Suspension, die auf den Festelektrolytkörper in an sich bekannter Weise aufgetragen wird und anschließend mit dem Festelektrolytkörper ko-gesintert wird, insbesondere aus einer Mischung der Oxidpulver, gewonnen durch eines der an sich bekannten Gewinnungsverfahren Kofällen oder Vereinigung und Mischung von Suspensionen mit getrennt gefällten Komponenten, erzeugt wird, wobei das Al_2O_3 -Pulver in der Mischung 60 bis 85 Gew.-% ausmacht.

4.2 Die weiteren Entgegenhaltungen sind weniger relevant.

4.3 Daher ist der Gegenstand des vorliegenden Anspruchs 1 neu im Sinne von Artikel 54 EPÜ.

5. *Erfinderische Tätigkeit*

5.1 Gemäß der vorliegenden Beschreibung ist das aus D1 (siehe Seite 2, zweiter Absatz bis Seite 3, erster Absatz; siehe im Vergleich Seite 3, dritter Absatz bis Seite 4, erster Absatz und Seite 10, letzter Absatz) bekannte Verfahren insofern nachteilig, daß es nicht ermöglicht, eine festhaftende aufsinternde Schutzschicht mit relativ enger Porengrößenverteilung und so mit relativ homogener Porosität, die einen optimalen Gaszutritt zur Außen- elektrode des Meßfühlers zuläßt, zu bilden. In dieser Hinsicht hat die Beschwerdeführerin besonders darauf

hingewiesen, daß sich Agglomerate von ZrO_2 in der Al_2O_3 -Matrix bilden können, wenn wie üblich getrennt gemahlene Pulver mechanisch vermischt werden, bzw. die Mischung mit einem zusätzlichen gemeinsamen Mahlverfahren realisiert wird, womit sich eine inhomogene Porenverteilung in der Deckschicht ergibt. Durch Verwendung der beiden, an sich bekannten Gewinnungsverfahren für das Erzeugen von Mischoxiden, ergibt sich glaubhaft eine innige Mischung der Komponenten der aufzutragenden Suspension schon vor der Herstellung dieser Suspension, was auch das oben erwähnte Problem löst.

- 5.2 D1 sind keine Angaben über die beiden im vorliegenden Anspruch 1 erwähnten Gewinnungsprozesse zu entnehmen. In Bezug auf Deckschichten mit Al_2O_3 und ZrO_2 enthält D1 (siehe Seite 11, Beispiele b) und c)) nur einzelne spezifische Angaben, und zwar für Schichten mit 75 Gew.-% ZrO_2 -Pulver und 25 Gew.-% Al_2O_3 -Pulver, beide mit je einer spezifischen Oberfläche, wobei es nicht erkennbar ist, ob diese bekannten Verfahren sich von den zur Prioritätszeit üblichen Verfahren unterscheiden, bei denen die zu mischenden Pulverkomponenten vor dem Auftragungsschritt gemischt werden. Wie von der Beschwerdeführerin glaubhaft vorgebracht, betrifft D1 (siehe die Ansprüche 1, 2 und 6; Seite 7, erster Absatz, vier letzte Zeilen; Seite 10, fünf letzte Zeilen) hauptsächlich die Herstellung von porösen Schutzschichten mit nur einer Komponente, und eine bessere Porenstruktur, ohne weitere Angaben über die spezifische Art der Verbesserung, wird nur erwähnt in Bezug auf solche Schichten, und zwar bezüglich ZrO_2 (Beispiel (a) in Vergleich zu Al_2O_3); in Bezug auf Schichten, die aus einem Gemisch aus insbesondere Aluminiumoxid und Zirkondioxid bestehen, sind D1 keine analogen Angaben über die Porenstruktur zu entnehmen.

5.3 Die beiden im Anspruch 1 erwähnten Gewinnungsverfahren sind zwar dem Fachmann bekannt. Daß es jedoch zur Lösung des genannten Problems nötig war, diese bestimmten Gewinnungsverfahren zu benützen, um die Mischpulver vor der Herstellung der aufzutragenden Suspension zu erzeugen, war, wie glaubhaft von der Beschwerdeführerin vorgetragen, zum Prioritätstag der vorliegenden Patentanmeldung insofern nicht naheliegend, als dem einschlägigen Stand der Technik die Verwendung dieser Methoden für die Herstellung von Schutzschichten von Meßfühlern nicht zu entnehmen ist, und als, wie aus D1 ersichtlich, eine bessere Porenstruktur nur in Zusammenhang mit dem Beispiel einer Schutzschicht mit fast ausschließlich einer Komponente (ZrO_2) (siehe Seite 10, zwei letzten Zeilen) erwähnt wird, wobei der Fachmann erst später erkannt hat, daß Aggregate für die Porenstruktur nachteilig sind. In dieser Hinsicht ist auch folgendes zu bemerken: der Fachmann kann sich zwar als Aufgabe stellen, Mehrkomponentenschutzschichten mit einer "besseren Porenstruktur" herzustellen; dies wird er jedoch durch eine rein routinemäßige Erprobung der aus dem einschlägigen Stand der Technik bekannten Herstellungsverfahren versuchen, z. B. durch Änderung der Zusammensetzung der Komponenten oder deren spezifischer Gehalte, oder durch Anpassung der Parameter des Mischungsvorgangs wie z. B. dessen Dauer; zu Methoden aus anderen Gebieten, bei denen das Material zuerst in einem zusätzlichen Schritt aufbereitet wird, womit sich eine engere Mischung der Komponenten und unter Umständen **eine homogenere Porenverteilung** ergeben kann, ist dagegen dem Stand der Technik nicht zu entnehmen, ob diese eindeutig auch zu einer "besseren Porenstruktur" bezüglich wichtiger Eigenschaften von Schutzschichten auf Meßfühlern, wie z. B. optimaler Haftung und Gasdiffusion, führen.

5.4 Daher beruht der Gegenstand des vorliegenden Anspruchs 1 auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 56 EPÜ und ist somit gewährbar im Sinne von Artikel 52 (1) EPÜ.

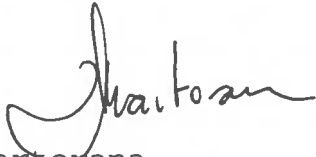
6. Da die europäische Patentanmeldung und die Erfindung, die sie zum Gegenstand hat, den Erfordernissen des Übereinkommens genügen, kann ein Patent erteilt werden.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird entschieden:

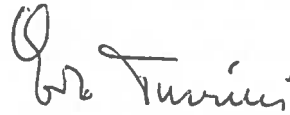
1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Die Sache wird an die Prüfungsabteilung zurückverwiesen, mit der Auflage, ein Patent zu erteilen auf der Grundlage der in der mündlichen Verhandlung vom 12. Januar 1994 eingereichten Ansprüche 1 bis 4, mit daran anzupassender Beschreibung und den ursprünglichen Figuren 1 und 2.

Der Geschäftsstellenbeamte:



P. Martorana

Der Vorsitzende:



E. Turrini



B. Sch.

