

T145¹ bis

**Entscheidung der Technischen Beschwerdekommission 3.3.1 vom 5. April 1984
T 38/84***

Zusammensetzung der Kammer:
Vorsitzender: D. Cadman
Mitglieder: K. Jahn
O. Bossung

Anwälte: Stamicarbon B.V.
Stichwort: "Toluoloxidation/
STAMICARBON"
EPÜ Artikel 52 (1), 56
"Erfinderische Tätigkeit" —
"Bedeutung der technischen Aufgabe" — "geringe Verbesserung eines großtechnischen Verfahrens"

Leitsatz

Eine zahlenmäßig geringe Verbesserung eines großtechnischen Verfahrens (hier: Ausbeuteverbessehung von 0,5%) stellt eine lohnende technische Aufgabe dar, die bei der Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit der beanspruchten Lösung nicht überprüft werden darf.

Sachverhalt und Anträge

I. Die am 11. März 1981 eingereichte

**Decision of the Technical Board of Appeal 3.3.1 dated 5 April 1984
T 38/84***

Composition of the Board:
Chairman: D. Cadman
Members: K. Jahn
O. Bossung

Applicant: Stamicarbon B.V.
Headword: "Oxidation of toluene/
STAMICARBON"
Articles 52 (1), 56
"Inventive step" — "Importance of the technical problem" — "Small improvement of commercially used process"

Headnote

The achievement of a numerically small improvement of a process commercially used on a large scale (here enhanced yield of 0,5%) represents a worthwhile technical problem which must not be disregarded in assessing the inventive step of its solution as claimed.

Summary of Facts and Submissions
I. European patent application No.

**Décision de la Chambre de recours technique 3.3.1 du 5 avril 1984
T 38/84***

Composition de la Chambre:
Président: D. Cadman
Membres: K. Jahn
O. Bossung

Demandeur: Stamicarbon B.V.
Référence: "Oxydation du toluène/
STAMICARBON"
Articles 52 (1), 56
"Activité inventive" — "Importance du problème technique" —
"Amélioration minime apportée à un procédé utilisé commercialement"

Sommaire

Une amélioration d'importance minime, une fois traduite en termes numériques, apportée à un procédé utilisé commercialement à grande échelle (en l'occurrence une augmentation du rendement de 0,5%) n'en constitue pas moins un problème technique digne d'intérêt, dont il convient de tenir compte pour l'appréciation de l'activité inventive qui implique la solution telle que revendiquée.

Exposé des faits et conclusions
I. La demande de brevet européen

und am 23. September 1981 unter der Nummer 0 036 223 veröffentlichte europäische Patentanmeldung Nr. 81 200 269.9, für die die Priorität einer niederländischen Voranmeldung vom 15. März 1980 in Anspruch genommen wird, wurde durch Entscheidung der Prüfungsabteilung des Europäischen Patentamts vom 21. September 1983 zurückgewiesen. Der Entscheidung lagen sieben Patentansprüche zugrunde, von denen Anspruch 1 wie folgt lautet:

"Verfahren zur Herstellung einer Benzolmonocarbonsäure durch Oxidation einer Monoalkylbenzolverbindung in der flüssigen Phase mit Hilfe eines molekularen Sauerstoff enthaltenden Gases in Gegenwart eines Katalysators aus einer Cobalt- und einer Manganverbindung, die beide im Reaktionsgemisch löslich sind, dadurch gekennzeichnet, daß das Atomverhältnis Mangan: Cobalt zwischen 1 : 500 und 1 : 100 000 liegt."

II. Die Zurückweisung wurde damit begründet, daß sich dieses Verfahren für den Fachmann in naheliegender Weise aus einer Kombination der Druckschriften FR-A-2 107 340 (1) und EP-A-2 749 (2).

In (1) sei ein Verfahren zur Herstellung von Benzolmonocarbonsäuren beschrieben, bei dem ein Gemisch aus einer Dialkyl- und einer Monoalkylbenzolverbindung in der flüssigen Phase mit Hilfe eines molekularen Sauerstoff enthaltenden Gases in Gegenwart eines Katalysators aus einer Cobalt- und einer Manganverbindung oxidiert werde, der ein Atomverhältnis Mangan: Cobalt aufweise, das innerhalb des Bereichs liege, der im vorliegenden Anspruch 1 beansprucht werde.

Das beanspruchte Verfahren unterscheidet sich von dem bekannten Verfahren nur dadurch, daß die in (1) zur Umwandlung einer Methylgruppe des p-Xylols und der direkt an den Ring gebundenen Methylgruppe des Methylparatoluats in Carboxylgruppen verwendeten Verfahrensschritte auf die anmeldeungsgemäß Oxidation übertragen würden, bei der die Methylgruppe des Toluols oder von Toluolderivaten wie z. B. Halo-, Nitro-, Cyano-, tert. Alkyl-, Alkoxy- und Aryloxytoluenen in einer Carboxylgruppe umgewandelt werde.

Es sei nicht ersichtlich, was den Fachmann davon abhalten würde, die gegebenen Ausgangsstoffe in dem bekannten Verfahren zu benutzen, zumal die Herstellung von Benzolmonocarbonsäuren durch Oxidation dieser Alkylbenzolderivate unter sehr ähnlichen Bedingungen bereits aus (2) bekannt sei.

Zwar sei in (1), Seite 9, Zeile 33 das bevorzugte Verhältnis Mn : Co mit 1 : 99 bis 90 : 10 angegeben. Jedoch werde auf Seite 9, Zeile 32 und in An-

81 200 269.9 filed on 11 March 1981 and published on 23 September 1981 under publication No. 0 036 223, claiming the priority of the Netherlands prior application of 15 March 1980, was refused by decision of the European Patent Office dated 21 September 1983 on the basis of 7 claims of which claim 1 has the following wording:

"Process for the preparation of a benzene-monocarboxylic acid by oxidation of a monoalkyl-benzene compound in the liquid phase with the aid of a gas containing molecular oxygen, in the presence of a catalyst composed of a cobalt and a manganese compound, both of which are soluble in the reaction mixture characterised in that a manganese:cobalt atomic ratio of between 1:500 and 1:100 000 is applied."

II. The refusal was on the grounds that this method was obvious for the man skilled in the art from a combination of FR-A-2 107 340 (1) and EP-A-2 749 (2).

A process for the preparation of benzene-monocarboxylic acids is described in (1) wherein a mixture of a dialkylbenzene compound and a monoalkylbenzene compound is oxidised in the liquid phase with the aid of a gas containing molecular oxygen in the presence of a catalyst composed of a cobalt and a manganese compound and wherein a catalyst is used which possesses a manganese to cobalt atomic ratio lying within the range claimed in the present claim 1.

The claimed process only differs from this prior art process in transferring the process steps used in (1) for the transformation of a methyl-group of p-xylene and the methyl-group directly bonded to the ring of methyl para-toluate into carboxyl-groups to the oxidation according to the present application wherein the methyl-group of toluene or toluene derivatives such as halo-, nitro-, cyano-, tertiary alkyl-, alkoxy- and aryloxytoluenes, is converted to a carboxyl-group.

No reasons can be seen which would prevent the man skilled in the art from using the present starting materials in the known process, especially since the preparation of benzene-monocarboxylic acids by oxidation of such alkyl-benzene derivatives under very similar conditions is already known from (2).

It is true, that on page 9, line 33 of (1) the preferred ratio of Mn : Co is indicated as 1 : 99 bis 90 : 10. However, according to page 9, line 32 and according to claim

n° 81 200 269.9, déposée le 11 mars 1981 et publiée le 23 septembre 1981 sous le n° 0 036 223, pour laquelle est revendiquée la priorité d'une demande antérieure déposée le 15 mars 1980 aux Pays-Bas, a été rejetée le 21 septembre 1983 par décision de la Division d'examen de l'Office européen des brevets, rendue sur la base de sept revendications dont la première (la revendication 1) s'énonce comme suit:

"Procédé de préparation d'un acide benzène-monocarboxylique par oxydation en phase liquide d'un monoalkyl-benzène à l'aide d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire, en présence d'un catalyseur formé par un composé du cobalt et un composé du manganèse, tous deux solubles dans le mélange réactionnel, caractérisé en ce que le rapport du nombre d'atomes de manganèse au nombre d'atomes de cobalt est compris entre 1 : 500 et 1 : 100 000."

II. La demande a été rejetée au motif que pour l'homme du métier cette méthode était évidente, comme découlant de la combinaison des documents FR-A-2 107 340 (document n° 1) et EP-A-2 749 (document n° 2).

Le document n° 1 décrit un procédé de préparation d'acides benzène-monocarboxyliques, dans lequel un mélange formé d'un dialkyl-benzène et d'un monoalkyl-benzène est oxydé en phase liquide à l'aide d'un gaz contenant de l'oxygène moléculaire en présence d'un catalyseur constitué d'un composé du cobalt et d'un composé du manganèse, le catalyseur utilisé présentant cette caractéristique que le rapport du nombre d'atomes de manganèse au nombre d'atomes de cobalt se situe à l'intérieur de la plage revendiquée par l'actuelle revendication 1.

Le procédé revendiqué ne diffère de ce procédé connu qu'en ce qu'il reprend les étapes du procédé utilisé dans le document n° 1 pour la transformation en groupes carboxyliques d'un groupe méthyle de paraxylène et du groupe méthyle du paratoluolate de méthyle directement lié au noyau, pour l'oxydation selon la présente demande, dans laquelle le groupe méthyle du toluène ou de dérivés du toluène, tels que les halo-, nitro-, cyano-, tertio alkyl-, alkoxy- et aryloxy-toluenes, est transformé en un groupe carboxylique.

On ne voit pas pour quelle raison l'homme du métier ne pourrait pas utiliser les composés de départ selon la demande en cause dans le procédé connu, d'autant que la préparation des acides benzène-monocarboxyliques par oxydation dans des conditions très semblables de ces dérivés alkyl-benzène avait déjà été exposée dans le document n° 2.

Il est vrai qu'à la page 9, ligne 33 du document n° 1, il est indiqué que le rapport Mn : Co doit de préférence être compris dans la plage 1 : 99 à 90 : 10.

spruch 1 derselben Entgegenhaltung ausdrücklich erwähnt, daß Katalysatoren verwendet werden könnten, die ein Verhältnis Mn : Co zwischen 0,1 : 99,9 und 99 : 1 aufwiesen; dieses Verhältnis überschneide sich mit dem im vorliegenden Fall beanspruchten.

Der auf Seite 5 der streitigen Anmeldung angestellte Vergleich mit dem Stand der Technik lasse nur einen geringfügigen Ausbeuteunterschied zwischen der Verwendung eines Katalysators, bei dem das Atomverhältnis Mn : Co innerhalb des in (1) genannten bevorzugten Bereichs liege, und eines Katalysators erkennen, bei dem dieses Verhältnis außerhalb des bevorzugten, aber noch innerhalb des in (1) offenbarten und beanspruchten Gesamtbereichs liege. Die Prüfungsabteilung könne in diesem Vergleich keinen endgültigen Beweis dafür sehen, daß der anmeldungsgemäße Gegenstand die geforderte erfinderische Tätigkeit aufweise, da alle Schritte des beanspruchten Verfahrens, insbesondere in dem Bereichsanteil des Atomverhältnisses Mn : Co, der sich mit dem in (1) offenbarten Bereich überschneide, gegenüber dem Stand der Technik nahelegend seien.

III. Am 9. Oktober 1983 legte die Beschwerdeführerin unter Entrichtung der entsprechenden Gebühr Beschwerde gegen die Entscheidung vom 21. September 1983 ein.

In der am 12. Januar 1984 nachgereichten Beschwerdebegründung wurde ausgeführt, daß die Druckschrift FR-A-2 107 340 (1) deutlich eine Tendenz zur Verwendung von Katalysatoren mit einem relativ niedrigen Atomverhältnis Co : Mn erkennen lasse. Dies geht aus Tabelle 1 auf Seite 20 hervor, in der das beste Ergebnis mit einer Ausbeute von 92,6 % bei einem Atomverhältnis Co : Mn von 32 erzielt werde (Beispiel 4). Eine Erhöhung dieses Verhältnisses nach den Beispielen 3, 2 und 1 führe zu einer geringeren Ausbeute. Eine ähnliche Tendenz lasse sich aus den Tabellen 3 (S. 21) und 5 (S. 22) herauslesen. Die beste Ausbeute in diesen Tabellen werde bei einem Atomverhältnis Co : Mn von 9 bzw. 19 erreicht.

Das Vergleichsbeispiel 2, (Tabelle 1, S. 20) der Entgegenhaltung (1), bei dem ein Atomverhältnis Co : Mn von 2500 angewandt werde, zeige eine Ausbeute von 89,1%. Die Tendenz zur Abkehr von den oben erwähnten höheren Atomverhältnissen Co : Mn trete in diesem Vergleichsbeispiel noch deutlicher zu Tage.

Es sei recht zweifelhaft, ob die Verfahren nach (1) und nach der vorliegenden Patentanmeldung vergleichbar seien. Bei dem Verfahren nach (1) seien nämlich

1 of (1) the possibility of using catalysts having a Mn : Co ratio of 1 : 99,9 to 99 : 1 is explicitly indicated, this ratio overlapping with the ratio presently claimed.

The Examining Division cannot view the comparison with the prior art corresponding to (1) given on page 5 of the present application, which shows only a trivial difference in yields between the use of a catalyst having a Mn : Co atomic ratio within a preferred range given in (1) and the use of a catalyst having this ratio outside of the preferred range but lying within the overall range disclosed and claimed in (1), as definitive proof of the presence of the required inventive step in the present subject-matter as all of the steps of the presently claimed process are obvious in view of the prior art, and particularly in the portion of the range of atomic ratio Mn : Co which overlaps with the range disclosed in (1).

III. On 9 October 1983 the appellant lodged an appeal against the decision of 21 September 1983, with payment of the fee.

In the Statement of Grounds submitted on 12 January 1984 it was pointed out that in FR-A-2 107 340 (1) a tendency is clearly present towards the use of catalysts with a relatively low Co : Mn atomic ratio. This may be seen from table 1, page 20, in which the best result is obtained in example 4, the yield being 92,6%, at a CO : Mn atomic ratio of 32. Raising this Co : Mn ratio according to examples 3, 2 and 1 results in lower yields. A similar tendency may be derived from tables 3, page 21 and 5, page 22. The best yields in these tables are obtained at Co : Mn atomic ratios of 9 and 19 respectively.

Comparative example 2 (table 1, page 20) of (1), in which an atomic ratio Co : Mn of 2500 is applied, shows a yield of 89,1%. The tendency against higher Co : Mn ratios as mentioned above is even more prominent in this comparative example 2.

It is rather doubtful whether the processes of (1) and of the present patent application could be compared. The reason for this is that the variations in

Cependant, à la page 9, ligne 32 et dans la revendication 1 de ce même document n° 1, est indiquée explicitement la possibilité d'utiliser des catalyseurs caractérisés par un rapport Mn : Co compris entre 0,1 : 99,9 et 99 : 1, la plage revendiquée dans ce document se chevauchant avec la plage revendiquée actuellement par la demanderesse:

Pour la Division d'examen, il ressort de la comparaison avec l'état de la technique selon le document n° 1, qui figure à la page 5 de la demande en cause, que l'on n'obtient qu'une différence de rendement insignifiante lorsqu'au lieu d'un catalyseur pour lequel le rapport atomique Mn : Co se situe à l'intérieur de la plage à choisir de préférence selon le document n° 1, on utilise un catalyseur pour lequel ce rapport se situe à l'extérieur de cette plage préférée, mais à l'intérieur de la plage générale exposée et revendiquée dans le document n° 1; cette comparaison ne prouve donc pas de manière absolue que l'objet de la demande en cause implique l'activité inventive voulue, étant donné que toutes les étapes du procédé revendiqué actuellement dans ladite demande découlent d'une manière évidente de l'état de la technique, en particulier dans le cas où les rapports Mn : Co se situent dans cette fraction de la plage qui est commune avec celle divulguée dans le document n° 1.

III. Le 9 octobre 1983, la requérante a formé un recours contre la décision du 21 septembre 1983 et a acquitté la taxe correspondante.

Dans le mémoire exposant les motifs du recours, produit le 12 janvier 1984, la requérante fait observer que l'on peut nettement discerner dans le document n° 1 (FR-A-2 107 340) une tendance à utiliser des catalyseurs pour lesquels le rapport atomique Co : Mn est relativement peu élevé, comme le montre le tableau 1, page 20 : le meilleur résultat est obtenu dans l'exemple n° 4, avec un rendement de 92,6% pour un rapport atomique Co : Mn égal à 32. Si ce rapport Co : Mn augmente, comme c'est le cas dans les exemples 3, 2 et 1, les rendements obtenus sont plus faibles. La même tendance apparaît dans les tableaux 3, page 21 et 5, page 22. Dans ces tableaux, les rendements les meilleurs sont obtenus lorsque le rapport atomique Co : Mn est respectivement de 9 et de 19.

Dans l'exemple comparatif 2 (tableau 1, page 20 du document n° 1), où ce rapport est égal à 2500, le rendement obtenu est de 89,1%. Cette tendance à éviter les rapports Co : Mn plus élevés mentionnés au paragraphe précédent est encore plus marquée dans cet exemple comparatif 2.

Il est fort douteux que les procédés exposés dans le document n° 1 puissent être comparés avec ceux exposés dans la demande de brevet en cause. La

die Ausbeuteschwankungen wegen der unterschiedlichen Reaktivität der Ausgangsverbindungen erheblich größer als bei dem anmeldungsgemäßem Verfahren.

Würde man jedoch einen Vergleich zwischen beiden Verfahren anstellen, so würde das Atomverhältnis Co : Mn des Vergleichsbeispiels 2 genau in den bevorzugten Bereich des anmeldungsgemäßem Verfahrens passen.

Die Lehre der Entgegenhaltung (1) führt daher von der vorliegenden Erfindung weg, die die Verwendung eines Katalysators mit einem hohen Atomverhältnis Co : Mn beansprucht.

Außerdem werde die Rückzahlung der Beschwerdegebühr beantragt.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 und Regel 64 EPÜ; sie ist somit zulässig.

2. In der Beschreibungseinleitung wird ausgeführt, daß in dem Verfahren nach der niederländischen Patentanmeldung Nr. 7 311 187 Benzoesäure durch Oxidieren von Toluol bei weitgehender Abwesenheit von niedrigen Fettsäuren und Halogenverbindungen und in Gegenwart einer Cobalt- und einer Mangangebindung mit einem Gewichtsverhältnis Cobaltmetall : Manganmetall von weniger als 99,8 : 0,2 hergestellt wird, was bedeutet, daß das Atomverhältnis Mangan : Cobalt höher als 1 : 466 sein muß. Dieses Verfahren hat den Nachteil, daß die Selektivität der Umsetzung zu der gewünschten Benzolmonocarbonsäure nicht befriedigend ist. Die Erfindung soll diesbezüglich eine Verbesserung bringen.

Ein Vergleichsversuch (A) zeigt, daß die Oxidation von Toluol mit Luft in der flüssigen Phase in Gegenwart eines löslichen Katalysators mit einem Verhältnis Mn : Co von 1 : 67 dazu führt, daß von je 1 000 Mol Toluol, die dem Reaktionsgefäß zugeführt werden, nur 908 Mol Benzoesäure und nicht, wie in der vorliegenden Erfindung, bei der z. B. ein Verhältnis Mn : Co von 1 : 1000 oder 1 : 3 000 (Beispiele 1 und 2) angewandt wird, 913 Mol wiedergewonnen werden.

Dieser Vergleich wurde bei der Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit übergegangen, da der Ausbeuteunterschied zwischen dem bekannten und dem anmeldungsgemäßem Verfahren für unbedeutend erachtet wurde. Mit dem Übergehen dieses Vergleiches verkennt die Prüfungsabteilung die der streitigen Anmeldung zugrunde liegende Aufgabe.

Zwar ist die Verbesserung nur gering, aber auch geringe Verbesserungen können ein technisches Problem widerumspiegeln, insbesondere wenn es sich um

the yields in the process of (1) are much greater than in the process according to the present application due to differences in reactivity of the starting compounds. However, if comparison between the two processes is made, the Co : Mn atomic ratio of comparative example 2 would fit perfectly in the preferred range of the process according to the present application.

Therefore reference (1) teaches away from the present invention, which claims the use of a catalyst with a high Co : Mn ratio.

Moreover, the reimbursement of the appeal fee is requested.

Reasons for the decision

1. The appeal is in accordance with Articles 106-108 and Rule 64 EPÜ; it is therefore admissible.

2. In the introductory part of the present specification is pointed out that in the process according to Dutch patent application No. 7 311 187 benzoic acid is prepared by oxidizing toluene in the substantial absence of a lower fatty acid and/or a halogen compound, and in the presence of a cobalt compound with a weight ratio between cobalt metal and manganese compound of less than 99,8 : 0,2, which means that the manganese : cobalt atomic ratio must be more than 1 : 466. This process has as a disadvantage that the selectivity of the reaction to form the desired benzene-monocarboxylic acid is not satisfactory. It is said that the aim of the invention is to improve this.

A comparative experiment (A) demonstrates that the oxidation of toluene with air in the liquid phase and in the presence of a soluble catalyst having a ratio of Mn : Co = 1 : 67 results in the recovery of 908 moles of benzoic acid for every 1000 moles of toluene fed to the reactor instead of 913 moles according to the invention which applies for example a ratio Mn : Co = 1 : 1000 and 1 : 3 300 (examples 1 and 2) according to the invention.

That comparison was dismissed in assessing inventive step, since the difference in yields between the known process and that of the application in suit was considered trivial. In not accepting this comparison, the Examining Division failed to appreciate the problem underlying the present application.

It is true that the improvement is a small one, but even small improvements can mirror a technical problem, particularly where an industrially important process

raison en est que dans le procédé selon le document n° 1, les variations de rendement sont beaucoup plus importantes que dans le procédé selon ladite demande, étant donné les différences de réactivité des composés de départ. Néanmoins, si l'on effectue cette comparaison, le rapport atomique Co : Mn dans l'exemple comparatif 2 se situe tout à fait dans la plage à choisir de préférence, dans le procédé selon la demande en cause.

En conséquence, le document n° 1 diffère de la présente invention, qui revendique l'utilisation d'un catalyseur pour lequel le rapport Co : Mn est élevé.

La requérante a demandé par ailleurs le remboursement de la taxe de recours.

Motifs de la décision

1. Le recours répond aux conditions énoncées aux articles 106, 107 et 108 et à la règle 64 de la CBE; il est donc recevable.

2. Dans l'introduction de la description de la demande en cause, il est souligné que dans le procédé selon la demande de brevet n° 7 311 187, l'acide benzoïque est préparé par oxydation du toluène en l'absence pratiquement d'acide gras inférieur et/ou de composé halogéné et en présence d'un composé du cobalt et d'un composé du manganèse, le rapport en poids du cobalt métallique au manganèse métallique étant inférieur à 99,8 : 0,2, ce qui signifie que le rapport du nombre d'atomes de manganèse au nombre d'atomes de cobalt doit être supérieur à 1 : 466. L'inconvénient de ce procédé est que la sélectivité de la réaction pour former l'acide benzène-monocarboxylique souhaitée n'est pas satisfaisante. Il est affirmé que l'invention vise à améliorer cette sélectivité.

Il ressort d'un essai comparatif (A) que l'oxydation du toluène par l'air, en phase liquide et en présence d'un catalyseur soluble pour lequel le rapport Mn : Co est de 1 : 67, permet la récupération de 908 moles d'acide benzoïque pour 1 000 moles de toluène introduites dans la réacteur, au lieu de 913 moles pour l'invention, qui utilise un catalyseur pour lequel le rapport Mn : Co est par exemple de 1 : 1 000 (exemple 2) ou de 1 : 3 300 (exemple 1).

Il n'a pas été tenu compte de cette comparaison pour l'appréciation de l'activité inventive, étant donné que la différence entre les rendements obtenus selon le procédé connu et ceux obtenus selon la demande en cause a été considérée comme insignifiante. N'acceptant pas cette comparaison, la Division d'examen ne pouvait apprécier le problème sur lequel reposait ladite demande.

Il est vrai que l'amélioration est faible, mais des améliorations même minimales peuvent refléter l'existence d'un problème technique, notamment lors-

ein industriell bedeutsames Verfahren zur Herstellung chemischer Massengüter handelt. Die katalytische Oxidation von Toluol ist das wichtigste und gebräuchlichste Verfahren zur Herstellung von Benzoesäure (vgl. Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, 4. Aufl., Bd. 8, 1974, S. 367, rechte Spalte). Bei diesem Verfahren werden mehr als 225 000 t Toluol verarbeitet (vgl. Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, 3. Aufl., Bd. 3, 1978, S. 780, die letzten beiden Absätze und S. 782 oben). Nach der Druckschrift FR-A-2 196 317 (3), die der obengenannten NL-A entspricht, kann der Ausstoß einer einzigen Fabrik, die dieses Verfahren anwendet, bis zu 50 000 Jato Benzoesäure betragen (siehe S. 4, Zeilen 12 bis 15), was von Kirk-Othmer bestätigt wird (vgl. Liste auf S. 782 unten). Diese Zahlen machen deutlich, daß auch eine geringe Verbesserung der Ausbeute dieses Verfahrens eine wirtschaftlich lohnende technische Aufgabe darstellt, die bei der Beurteilung der erfundenen Tätigkeit des verbesserten Verfahrens nicht übersehen werden darf.

for the production of bulk chemicals is concerned. The catalytic oxidation of toluene is the most important and commonly used process for the manufacture of benzoic acid (cf. Ullmann's Enzyklopädie der technischen Chemie, 4th edition, Volume 8, 1974, page 367 right hand column). This process consumes more than 225 000 metric tons of toluene per year (cf. Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, 3rd edition, volume 3, 1978, page 780, the last two paragraphs and page 782 above). According to FR-A-2 196 317 (3), which is an equivalent to the above NL-A, the output of a single plant applying this process can amount to 50 000 tons of benzoic acid per year (see page 4, lines 12 to 15) which is confirmed by Kirk-Othmer (cf. the list on page 782 below). These figures underline that even a small improvement in the yield of this process is an economically worthwhile technical problem which must not be disregarded in assessing the inventive step of the improved process.

3. Daher muß nach dem der Kammer vorliegenden Beweismaterial die der streitigen Anmeldung zugrunde liegende technische Aufgabe in der Verbesserung des Verfahrens zur katalytischen Oxidation von Toluol in der Flüssigphase bezüglich der Ausbeute an Benzoesäure gesehen werden.

Diese Aufgabe wird von der Anmelderin dadurch gelöst, daß sie einen löslichen Katalysator mit einem Atomverhältnis Mn : Co von 1 : 500 bis 1 : 100 000 verwendet.

4. Diese Lehre läßt sich keiner der der Kammer vorliegenden Veröffentlichungen entnehmen. Die streitige Anmeldung gilt daher als neu.

Es ist nun zu prüfen, ob der Gegenstand der Anmeldung gegenüber dem Stand der Technik naheliegend ist.

Hier sind zunächst die in den Tabellen 1 und 2 der Entgegenhaltung (3) aufgeführten Zahlen über die "Selektivität", d. h. die entstandene Benzoesäure und die Nebenprodukte, die im Verhältnis zu dem verbrauchten Toluol in diese Säure überführt werden können, aufschlußreich. Die "Selektivität", der in grober Annäherung mit der Ausbeute an Benzoesäure vergleichbar ist, hängt von dem Atomverhältnis Mn : Co ab und steigt von den beiden Endpunkten aus an, d. h. Mn : Co etwa 1 : 500 (Tabelle 1, 1-b und Tabelle 2, 2-b) einerseits und Mn : Co etwa 19 : 1 (Tabelle 1, 1-i) bzw. Mn : Co etwa 1 : 1,5 (Tabelle 2, 2-g) andererseits, wobei bei einem Verhältnis von etwa 1 : 19 (Tabelle 1,

qu'il s'agit d'un procédé industriel important pour la production à grande échelle de produits chimiques. L'oxydation catalytique du toluène est le procédé de fabrication d'acide benzoïque le plus important et le plus communément utilisé (voir Enzyklopädie der technischen Chemie, Ullmann, 4^e édition, volume 8, 1974, page 367, colonne de droite). Ce procédé consomme plus de 225 000 tonnes de toluène par an (voir Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, 3rd edition, volume 3, 1978, page 780, les deux derniers paragraphes et haut de la page 782). Selon le document FR-A-2 196 317 (document n° 3), qui correspond au document NL-A mentionné ci-dessus, la production d'une seule installation utilisant ce procédé peut atteindre 50 000 tonnes d'acide benzoïque par an (voir page 4, lignes 12 à 15), ce qui est confirmé par Kirk-Othmer (voir la liste figurant au bas de la page 782). Ces chiffres montrent bien qu'une amélioration même minime du rendement obtenu par ce procédé n'en constitue pas moins un problème technique digne d'intérêt sur le plan économique, dont il convient de tenir compte pour l'appréciation de l'activité inventive qu'elle implique.

3. En conséquence, ainsi que l'a déclaré la requérante dans les pièces soumises à la Chambre, il y a lieu de considérer que le problème technique sur lequel se fonde la demande en cause est celui de l'amélioration du procédé d'oxydation catalytique en phase liquide du toluène, en vue d'augmenter le rendement en acide benzoïque.

Pour résoudre ce problème, la demanderesse utilise un catalyseur soluble pour lequel le rapport atomique Mn : Co est compris entre 1 : 500 et 1 : 100 000.

4. Aucune des publications soumises à la Chambre ne fournit de telles indications. Par conséquent, la demande en cause doit être considérée comme nouvelle.

Il y a lieu par conséquent d'examiner si l'objet de la demande découle d'une manière évidente de l'état de la technique.

In premier lieu, dans les tableaux 1 et 2 du document n° 3, les chiffres concernant la "sélectivité", c'est-à-dire, la quantité d'acide benzoïque formé et de sous-produits pouvant être transformés en acide par rapport à la quantité de toluène consommé, ne manquent pas d'être instructifs. La "sélectivité", qui est comparable en gros au rendement en acide benzoïque, dépend du rapport atomique Mn : Co; elle augmente à partir de deux extrêmes, c'est-à-dire pour Mn : Co égal à 1 : 500 environ (tableau 1, essai n° 1-b) et tableau 2, essai n° 2-b) d'une part, et pour Mn : Co égal à 19 : 1 environ (tableau 1, essai n° 1-i), ou pour Mn : Co égal à 1 : 1,5 environ, d'autre part (tableau 2, essai n° 2-g), pour

1 : 20 mit 190 °C und 10 kg/cm²) bzw. 1 : 20 (Tabelle 2, 2-e mit 160° und 7 kg/cm²) ein Höchstwert (93,4 %, 94 %) erreicht wird. Aus diesen Werten würde der Fachmann schließen, daß die Ausbeute an Benzoesäure weiter abnimmt, wenn beide Endpunkte überschritten werden.

atteindre son maximum (respectivement 93,4% ou 94%) si ce rapport est d'environ 1 : 19 (tableau 1, essai n° 1-e, réalisé à 190°C, sous 10 kg/cm²) ou de 1 : 20 (tableau 2, essai n° 2-e, réalisé à 160°C, sous 7 kg/cm²). L'homme du métier serait tenté de conclure de ces résultats que le rendement en acide benzoïque continuerait à diminuer si le rapport en question était choisi au-delà de ces deux extrêmes.

5. Les deux documents cités dans la décision contestée ne fournissent pas assez d'éléments pour qu'il soit possible de prédir comment améliorer le rendement en acide benzoïque dans l'oxydation du toluène. Le document n° 1 cité en première instance traite de l'oxydation par l'oxygène, en phase liquide, d'un mélange formé par le p-xylène et le p-toluate, le méthyle, pour donner un mélange comprenant de l'acide p-toluaïque et du téréphthalate de monométhyle. Cette oxydation est une étape dans une séquence de réactions conduisant de p-xylène à diméthyl téréphthalate (revendication 6).

En ce qui concerne l'étape d'oxydation, un seul composant du mélange à oxyder, à savoir le p-toluaïque de méthyle, est un monoalkylbenzène au sens où ce terme est défini dans la demande en cause (voir page 2, lignes 17 à 21). Le procédé connu vise essentiellement à diminuer de façon sensible la quantité d'impuretés colorées et fluorescentes (voir page 5, lignes 15 à 21), problème tout à fait différent de celui envisagé dans la demande en cause.

As far as the oxidation step is concerned, only one component of the mixture due to be oxidised, namely methyl p-toluate, is a monoalkylbenzene compound in the meaning of the definition according to the present application (cf. page 2 lines 17 to 21). The known process mainly aims at substantially decreasing the amount of coloured and fluorescent impurities (see page 5 lines 15 to 21), a problem which is quite different from that envisaged in the present application.

Dennoch wurde diese Schrift bei der Beurteilung des Naheliegens der vorliegenden Anmeldung als relevant erachtet, da die Katalysatoren offenbart werden, die denselben Atomverhältnsbereich Mn : Co aufweisen, der auch in der streitigen Anmeldung beansprucht wird. Diese Betrachtungsweise trägt jedoch der dem beanspruchten Verfahren zugrunde liegenden technischen Aufgabe nicht Rechnung und ist daher nicht geeignet, den Einwand zu stützen, die Erfindung sei naheliegend. Was nun die Ausbeute anzeigt, so ist in Tabelle 1 die tatsächliche Ausbeute aller Verbindungen aufgeführt, die durch Oxidation oder Veresterung in Dimethylterephthalat überführt werden können (vgl. S. 12, Zeilen 7 bis 16). Wenn man davon ausgeht, daß die Ausbeute an Monomethylterephthalat, dem Oxidationsprodukt des Monoalkylbenzols Methyl-p-toluat, parallel zu der Gesamtausbeute an Oxidationsprodukten verläuft, so wird das beste Ergebnis im Beispiel 4 erzielt, wo die Ausbeute bei einem Atomverhältnis CO : Mn von 32 92,6 % beträgt. Die Erhöhung dieses Verhältnisses Co : Mn entspricht den Beispielen 3, 2 und 1 führt zu einer niedrigeren Ausbeute. Eine ähnliche Tendenz ist aus den Tabellen 3 auf S. 21 und 5 auf S. 22 ersichtlich. Die beste Ausbeute in diesen Tabellen wird bei einem Atomverhältnis 1 : 20 mit 190 °C und 10 kg/cm² erreicht, während die Ausbeute bei einem Atomverhältnis 1 : 20 mit 160° und 7 kg/cm² ein Höchstwert (93,4 %, 94 %) erreicht wird. Aus diesen Werten würde der Fachmann schließen, daß die Ausbeute an Benzoesäure weiter abnimmt, wenn beide Endpunkte überschritten werden.

Néanmoins, ce document a été considéré comme pertinent lorsque l'on a établi le caractère évident de l'objet de la demande en cause, étant donné qu'il indique des catalyseurs pour lesquels le rapport atomique Mn : Co se situe dans la même plage que celle revendiquée par la demanderesse. Cependant, ce faisant, on a négligé le problème technique sur lequel repose le procédé revendiqué et la référence à ce document ne permet pas de ce fait de confirmer le caractère évident de l'objet de la demande. En ce qui concerne la question du rendement, dans le tableau 1 est indiqué le rendement effectif de tous les composés susceptibles d'être transformés en téréphthalate de diméthyle par oxydation et/ou estérification (voir page 12, lignes 7 à 16). En supposant que le rendement en téréphthalate de monométhyle, produit d'oxydation du monoalkylbenzène considéré, à savoir le p-toluaïque de méthyle, croît ou décroît parallèlement au rendement total en produits d'oxydation, le meilleur résultat est obtenu dans l'exemple 4, le rendement étant de 92,6% pour un rapport atomique Co : Mn égal à 32. Lorsque ce rapport augmente, comme c'est le cas dans les exemples 3, 2 et 1, les rendements obtenus diminuent. Une même tendance se dégage des tableaux 3, page 21 et 5, page 22. Dans ces tableaux, les

Co : Mn von 9 bzw. 19 erzielt. Die Lehre von der Durchführung der Oxidation der obengenannten Monoalkylbenzolverbindung innerhalb dieser Atomverhältnisse legt aus der Sicht der Aufgabenstellung die Durchführung der Oxidation von Toluol und seinen Derivaten bei einem Atomverhältnis Mn : Co von über 1 : 500 offensichtlich nicht nahe.

6. Die Entgegenhaltung (2) offenbart ein Verfahren zur Oxidation einer Monoalkylbenzolverbindung wie Toluol mit Sauerstoff in der flüssigen Phase in Gegenwart eines Katalysators, der eine Kombination aus einer Cobalt- und einer Manganverbindung enthält (s. Ansprache 1 und 3, S. 2, Zeilen 17 bis 25 und S. 7, Zeilen 11 bis 15). Der Zweck dieses Verfahrens — eine höhere Ausbeute — wird dadurch erreicht, daß eine kleine Menge einer niedrigen aliphatischen Monocarbonsäure (s. Ansprache 1, S. 4, Absätze 1 und 3) verwendet wird. Diese Wirkung wird besonders deutlich bei der Oxidation von o-Chlortoluol (Tabellen 1 bis 4) und Toluol (Tabelle 2). Das jeweils höchste und niedrigste Verhältnis zwischen Mn und Co beträgt bei den in den Beispielen verwendeten Katalysatoren 1 : 50 (Beispiele 1 bis 6, 11, Bezugsbepiele 1 bis 4) bzw. 3 : 1 (Beispiel 12). Alle Beispiele geben die Änderung der Ausbeute in Abhängigkeit von der Menge und Konzentration der zugesetzten aliphatischen Monocarbonsäure sowie vom Gehalt an dem mitverwendeten Reaktionsbeschleuniger (Br) wieder, nicht aber die Auswirkung des Atomverhältnisses im Katalysator selbst auf die Ausbeute, da ein echter Vergleich fehlt. Dies gilt auch für die Beispiele 11 und 12, wo die Menge der Essigsäure, die Reaktionstemperatur, der Reaktionsdruck und der Luftdurchsatz jeweils gleich sind und die Reaktionszeit ähnlich ist (4 bzw. 4,5 Stunden). Da jedoch die Konzentrationen von Co und Br erheblich differieren, kann die höhere Ausbeute an Benzoesäure (Beispiel 11; 95,5 %) nicht die Änderung des Atomverhältnisses Mn : Co von 3 : 1 (Beispiel 12) zu 1 : 50 (Beispiel 11) zugeschrieben werden.

Folglich konnte der Fachmann dem Stand der Technik nicht entnehmen, daß die Aufgabe der Anmelderin durch Verwendung eines Mn-Co-Katalysators mit dem beanspruchten Atomverhältnisbereich zu lösen ist.

7. Daraus folgt, daß die angefochtene Entscheidung durch die Zurückweisungsgründe nicht getragen wird. Das nachgesuchte Patent kann jedoch noch nicht erteilt werden, weil noch einige Fragen offen sind. Es gilt vor allem zu klären, ob der Effekt, wie er mit Katalysatoren mit einem Atomverhältnis Mn : Co nach den Beispielen 1 und 2 er-

toluene and its derivatives at an atomic ratio Mn : Co beyond 1 : 500.

meilleurs rendements sont obtenus lorsque le rapport atomique Co : Mn est respectivement de 9 et de 19. Incontestablement, le fait que l'on recommande pour effectuer l'oxydation du monoalkylbenzène mentionné ci-dessus de choisir un rapport compris dans cette plage ne rend pas évident, eu égard au problème concerné, le choix d'un rapport atomique Mn : Co se situant au-delà de 1 : 50 pour effectuer l'oxydation du toluène et de ses dérivés.

6. Dans le document n° 2 est exposé un procédé d'oxydation par l'oxygène, en phase liquide, d'un monoalkylbenzène tel que le toluène, en présence d'un catalyseur formé par une combinaison d'un composé du cobalt et d'un composé du manganèse (voir revendications 1 et 3, page 2, lignes 17 à 25 et page 7, lignes 11 à 15). L'amélioration du rendement recherchée par ce procédé est obtenue grâce à l'utilisation en petite quantité d'un acide monocarboxylique aliphatique inférieur (voir revendication 1, page 4, paragraphes 1 et 3). Cet effet est particulièrement mis en évidence dans l'oxydation de l'orthochlorotoluène (tableaux 1 à 4) et du toluène (tableau 2). Pour les catalyseurs utilisés dans les exemples, les rapports Mn : Co se situent entre deux extrêmes, à savoir 1 : 50 (exemples 1 à 6, 11, référence examples 1 à 4), et 3 : 1 (exemple 12). All examples mirror the change of yield in relation to the amount and concentration of the added aliphatic monocarboxylic acid, and additionally the content of the incorporated reaction accelerator (Br), but not, in the absence of a real comparison, the influence of the atomic ratio within the catalyst itself on the yield. This applies also to examples 11 and 12 where the amount of acetic acid, the reaction temperature, reaction pressure and air flow rate are all the same, the reaction time being similar (4 and 4.5 hours respectively). But since the concentrations of Co and Br are substantially different, the improvement in the yield of benzoic acid (example 11: 95.5%) cannot be ascribed to the change of the atomic ratio Mn : Co from 3 : 1 (example 12) to 1 : 50 (example 11).

Consequently, the skilled person was not able to draw the conclusion from the prior art that the applicant's problem might be solved by applying a Mn-Co-catalyst having the claimed range of atomic ratio.

7. From the foregoing it follows that the decision under appeal is not supported by the grounds for refusal. However, the patent sought cannot be granted at present, because some questions have yet to be settled. First of all whether the effect demonstrated with catalysts having the atomic ratio Mn : Co of examples 1 and 2 is credibly achieved, i.e. without

zielt wird, glaubhaft, d. h. ohne weiteren Nachweis, über den gesamten beanspruchten Bereich einschließlich des Verhältnisses Mn : Co von 1 : 100 000 eintritt. Auch ist zu prüfen, ob sich die bei der Oxidation von Toluol gezeigte Erhöhung der Ausbeute auf die Oxidation des Toluolderivates erstreckt (vgl. S. 2, Zeilen 17 bis 21). Sollte dies der Fall sein, stellt sich die weitere Frage, ob sich das Ausmaß der Verbesserung wie im Fall der Toluol-Oxidation als technische Aufgabe qualifiziert, so daß die Frage des Naheliegens der Lösung dieser Aufgabe unter dem Gesichtspunkt der Aufgabenstellung zu beurteilen ist. Diesen wichtigen Fragen ist die Prüfungsabteilung, die in erster Linie für eine solche Untersuchung zuständig ist, noch nicht nachgegangen.

additional evidence, over the whole range as claimed including the ratio Mn : Co 1 : 100 000. Moreover, it is to be examined whether the improvement in yield demonstrated in the oxidation of toluene extends to the oxidation of its derivatives (cf. page 2 lines 17 to 21). Should this be the case, the further question arises whether the extent of the improvement qualifies, as in the toluene oxidation, as a technical problem, so that the question of obviousness of its solution has to be assessed from the point of view of this problem. These important questions have not yet been asked by the Examining Division which is in the first place competent for such an enquiry.

l'effet mis en évidence avec les catalyseurs pour lesquels le rapport atomique Mn : Co est le même que dans les exemples 1 et 2 est obtenu de manière crédible, c'est-à-dire sans qu'il soit nécessaire de recourir à de nouvelles preuves, pour l'ensemble de la plage revendiquée, y compris pour un rapport Mn : Co égal à 1 : 100 000. De plus, il faut voir si l'amélioration du rendement mise en évidence dans l'oxydation du toluène est également constatée dans l'oxydation de ses dérivés (voir page 2, lignes 17 à 21). Si tel est le cas, une autre question se pose : l'importance de l'amélioration peut-elle être considérée, tout comme dans l'oxydation du toluène, comme un problème technique, et convient-il par conséquent d'appréhender de ce point de vue le caractère évident ou non de la solution qui lui est apportée? Ces questions importantes n'ont pas encore été posées par la Division d'examen qui est l'autorité compétente au premier chef pour procéder à une telle investigation.

8. Il existe aucune raison d'accorder à la requérante le remboursement de la taxe de recours qu'elle a demandé. La Chambre estime qu'il n'y a pas eu vice substantiel de procédure justifiant le remboursement.

Par ces motifs,
il est statué comme suit:

8. The appellants have shown no cause for the requested reimbursement of appeal fee. The Board cannot find a substantial procedural violation by reason of which the reimbursement would be equitable.

Aus diesen Gründen
wird wie folgt entschieden:

- 1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
- 2. Die Sache wird an die Prüfungsabteilung zur weiteren Entscheidung zurückverwiesen.
- 3. Der Antrag auf Rückzahlung der Beschwerdegebühr wird zurückgewiesen.

- 1. The decision under appeal is set aside.
- 2. The case is remitted to the Examining Division for further prosecution.
- 3. The request to reimburse the appeal fee is dismissed.

3. La requête en remboursement de la taxe de recours est rejetée.