

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



19

Aktenzeichen / Case Number / N° du recours : T 136/85
Anmeldenummer / Filing No / N° de la demande : 79 104 424.1
Veröffentlichungs-Nr. / Publication No / N° de la publication : 0 012 224

Bezeichnung der Erfindung: Verfahren zur Herstellung von Riechstoff-
Title of invention: gemischen bzw. von einer reinen Komponente
Titre de l'invention : solcher Gemische, sowie solche Gemische
selbst
Klassifikation / Classification / Classement : C 07 C 33/02

ENTSCHEIDUNG / DECISION

vom / of / du 12 Mai 1987.

Anmelder / Applicant / Demandeur : L. Givaudan & Cie Societé
Anonyme

Patentinhaber / Proprietor of the patent /
Titulaire du brevet :

Einsprechender / Opponent / Opposant :

Stichwort / Headword / Référence :

EPÜ / EPC / CBE A. 56

Kennwort / Keyword / Mot clé : "Erfinderische Tätigkeit (ja) -
Mehrstufenverfahren"

Leitsatz / Headnote / Sommaire



Aktenzeichen: T 136/85

E N T S C H E I D U N G
der Technischen Beschwerdekammer 3.3.1
vom 12 Mai 1987.

Beschwerdeführer: L. Givaudan & Cie Societé Anonyme
Patentdienst
Postfach
CH-4002 Basel

Vertreter: Lederer, Franz, Dr.
Vanderwerth, Lederer & Riederer
Patentanwälte
Lucile-Grahn-Str. 22
D-8000 München 80

Angefochtene Entscheidung: Entscheidung der Prüfungsabteilung
002 des Europäischen Patentamts vom
11. Oktober 1982, mit der die
europäische Patentanmeldung Nr.
79 104 424.1 aufgrund des Artikels
97 (1) EPÜ zurückgewiesen worden
ist.

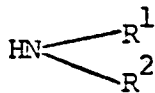
Zusammensetzung der Kammer:

Vorsitzender: K. Jahn
Mitglied: C. Gérardin
Mitglied: R. Schulte

Sachverhalt und Anträge

- I. Die am 09. November 1979 eingereichte europäische Patentanmeldung 79 104 424.1 (Publikationsnummer 12 224), für welche die US Priorität aus der Voranmeldung 960 152 vom 13. November 1978 in Anspruch genommen ist, wurde von der Prüfungsabteilung C3 durch Entscheidung vom 11. Oktober 1982 zurückgewiesen. Der Entscheidung lagen die ursprünglichen Ansprüche 1 bis 21 zugrunde, deren erster folgendermaßen lautete:

Verfahren zur Herstellung von Riechstoffgemischen, dadurch gekennzeichnet, daß man Myrcen mit einem sekundären Amin der Formel

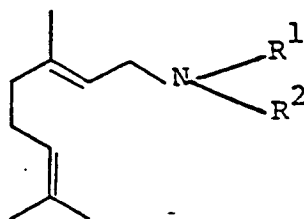


VII

worin R^1 und R^2 gleich oder verschieden sind und Aethyl oder einen höheren aliphatischen Rest darstellen bzw. zusammen eine cycloaliphatische Gruppe mit einem 1-8 Kohlenstoffatome enthaltenden Substituenten an einem der an den Stickstoff gebundenen Kohlenstoffatome bedeuten,

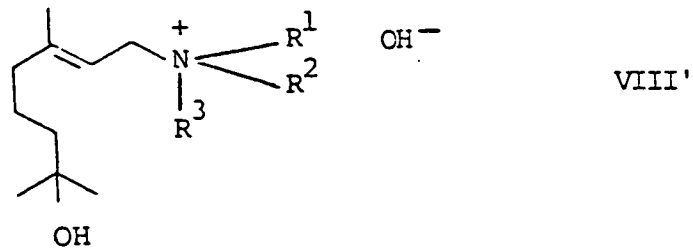
in Anwesenheit des entsprechenden Alkalimetallamids umgesetzt,

- b) das erhaltene Geranylamin der Formel



V

durch Hydratisierung und Alkylierung in beliebiger Reihenfolge, gefolgt von Behandlung mit einer starken Base, in das entsprechende E-3, 7-Dimethyl-7-hydroxy-2-octen-1-yl quaternäre Ammoniumhydroxid der Formel



worin R^3 einen Alkylrest mit 1-8 Kohlenstoffatomen darstellt oder für einen unsubstituierten oder substituierten Benzylrest steht und R^1 und R^2 obige Bedeutung besitzt, überführt,

c) die erhaltene Verbindung der Formel VIII' den Bedingungen des Hofmann'schen Abbaus unterwirft, um zu einem Myrcenol/cis-Ocimenol-Gemisch, das im wesentlichen frei von trans-Ocimenol ist, zu gelangen, und gewünschtenfalls dieses Myrcenol/cis-Ocimenol-Gemisch mit Acrolein unter den Bedingungen der Diels-Alder-Reaktion zu einem Isomeregemisch von 3- und 4-(4-Methyl-hydroxyamyl)- Δ^3 -cyclohexencarboxaldehyd umsetzt, und gewünschtenfalls aus dem Gemisch nicht umgesetztes cis-Ocimenol abtrennt.

II. In der Entscheidung wird ausgeführt, der Gegenstand des Anspruchs 1 sei im Hinblick auf die Lehre der Entgegenhaltungen US-A- 3 932 539 (2) und FR-A- 2 351 075 (3) nicht erfinderisch.

Die dritte Stufe des beanspruchten Verfahrens, die in der Beschreibung als kritisch angegeben wird, sei in (2) bereits beschrieben, wo allerdings ein Gemisch von Myrcenol, cis- und trans-Ocimenol als Reaktionsprodukt angesprochen werde. Gemäß den Ausführungen in den Spalten 7/8 werde aus den beiden einzelnen isomeren Ammoniumhydroxiden immer ein Dreikomponentengemisch erhalten. Daß - wie anmeldungsgemäß gefunden - in Wirklichkeit der Hofmann'sche Abbau stereospezifisch abläuft und vom Ausgangsisomeren abhängt, sei als reine Entdeckung zu werten.

Andererseits sei die Herstellung von N,N-Diäthylnerylamin sowie dessen Hydrolyse zu dem 7-Hydroxyderivat dem Dokument (3) zu entnehmen. Würde man die gleiche Reaktion mit Geranylamin durchführen, so bliebe lediglich die Quaternisierung von 7-Hydroxygeranylamin übrig. Für ein derartiges bekanntes Zwischenprodukt könne keine erfinderische Tätigkeit anerkannt werden.

III. Gegen diese Entscheidung hat die Anmelderin am 22. November 1982 unter gleichzeitiger Entrichtung der vorgeschriebenen Gebühr Beschwerde eingelegt. Zusammen mit der Beschwerdeeinlegung und mit der Begründung vom 11. Februar 1983 hat die Beschwerdeführerin die Streichung von "gegebenenfalls" in der sechszehnten und zweitletzten Zeile von Anspruch 1 beantragt; die Umsetzung des Myrcenol/cis-Ocimenol Gemisches mit Acrolein und die Abtrennung nicht umgesetzten cis-Ocimenols aus dem Gemisch werden somit obligatorische Stufen des Verfahrens.

Die Beschwerde wird etwa wie folgt begründet:

In (2) finde sich nicht der geringste Hinweis darauf, daß der Hofmann'sche Abbau der Ammoniumhydroxide im Falle eines einzelnen Isomeren stereospezifisch abläuft; der Fachmann hätte also gar keinen Grund gehabt, das bekannte Dreikomponentengemisch einer Diels Alder Reaktion zu unterwerfen, da hierbei die Anwesenheit von t-Ocimenol zu einem schwer wieder zu entfernenden Additionsprodukt führen mußte. Schließlich würde das Gemisch der drei Terpenalkohole die gestellte Aufgabe gar nicht erfüllen, da sich die Anmeldung nunmehr auf spezifische Riechstoffgemische, nämlich Umsetzungsprodukte von Myrcenol mit Acrolein, richte.

Die Entgegenhaltung (3) beschreibe lediglich die Umsetzung von Myrcen mit Diäthylamin zu Geranylamin, was der ersten Stufe des beanspruchten Verfahrens entspricht und in keiner Weise die nachfolgenden Stufen des anmeldungsgemäßen Gesamtverfahrens nahelegen könne.

- IV. Die Beschwerdeführerin beantragt, die Entscheidung der Prüfungsabteilung aufzuheben und die Erteilung eines Europäischen Patents aufgrund des geänderten Anspruchs 1 und der ursprünglichen Ansprüche 2 bis 10.

Entscheidungsgründe

1. Die Beschwerde entspricht den Artikeln 106 bis 108 sowie Regel 64 EPÜ; sie ist daher zulässig.
2. Die vorgenommenen Änderungen im Anspruch, nämlich das Streichen des Wortes gegebenenfalls in den sechsletzten und zweitletzten Zeilen, kommen einer Beschränkung auf zwei

ursprünglich offenbarte Alternativen gleich und sind daher nicht zu beanstanden.

3. Die Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung des Gemisches aus 3- und 4-(4-Methyl-4-hydroxyamyl)-³-cyclohexencarboxaldehyd (nachfolgend (II) bzw. (I) bezeichnet) aus dem leicht zugänglichen Myrcen.

Die Synthese von (I) aus Myrcen wurde schon im Rahmen eines zweistufigen Verfahrens in GB-A- 868 850 (1) beschrieben.

Dabei wird zuerst Myrcen durch bekannte, insbesondere durch zwei dort näher angegebene Methoden der Wasseranlagerung zu Myrcenol umgesetzt (Seite 1, Zeile 66 bis Seite 2, Zeile 32) und dieses einer Diels Alder Reaktion mit Acrolein unterworfen, die zum Produkt (I) führen soll (Seite 2, Zeilen 45 bis 68). Tatsächlich wurde jedoch später erkannt, daß hierbei stets Gemische aus (I) und (II) anfallen (vgl. US-A- 4 007 137 (4), Spalte 4, Zeile 49 bis Spalte 6, Zeile 34).

Die Aufgabe der vorliegenden Anmeldung ist darin zu sehen, ein weiteres Verfahren zur Herstellung des Gemisches von (I) und (II) anzugeben.

Diese Aufgabe wird durch das vorstehend näher bezeichnete vierstufige Verfahren gemäß Anspruch 1 gelöst, das sich, verkürzt, wie folgt, darstellen läßt:

- Umsetzung von Myrcen mit einem sekundären Amin in Anwesenheit eines Alkalimetallamids als Katalysator zu Geranylamin;

- Hydratisierung, Alkylierung und Behandlung mit einer starken Base, wodurch das quaternäre Ammoniumhydroxid-derivat des 7-Hydroxy-6,7-dihydrogeranylamins entsteht;
- Hofmann'scher Abbau dieses Derivats zu einem Gemisch von Myrcenol und cis-Ocimenol;
- Umsetzung dieses Gemisches mit Acrolein zu (I) und (II).

Aus den vielen Beispielen geht eindeutig hervor, daß diese Maßnahmen die bestehende Aufgabe auch tatsächlich lösen.

4. Ein derartiges vierstufiges Verfahren ist dem Stand der Technik nicht zu entnehmen, also neu. Auch die Vorinstanz geht von der Neuheit des Verfahrens aus, so daß sich nähere Ausführungen hierzu erübrigen.
5. Es ist daher zu untersuchen, ob es auf erfinderische Tätigkeit beruht.

Einleitend ist zu bemerken, daß sich bei der leichten Verfügbarkeit des Handelsproduktes Myrcen dieser Stoff als Ausgangsverbindung für eine alternative Herstellung eines (I), (II)-Gemisches geradezu anbot. Davon geht offensichtlich auch die Beschwerdeführerin aus, wenn sie einräumt, daß die erste Stufe ihres Verfahrens bereits aus (3) bekannt und nicht erfinderisch ist. Aus der einleitenden Analyse des nächsten Standes der Technik ergibt sich auch das Bekanntsein der hier beanspruchten vierten Verfahrensstufe (vgl. (2) Anspruch 1). Die Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit spitzt sich daher auf die Frage zu, ob der Fachmann angesichts der wenig anspruchsvollen Aufgabe, ein weiteres Verfahren zur Herstellung von (I), (II)-Gemischen mit Myrcen als Ausgangsstoff vorzuschlagen, durch (2) dazu angeregt worden

wäre, die Lücke zwischen den aus (3) und (1) bekannten Stufen, die sich vorrangig für eine aufgabengemäß anvisierte alternative Herstellungsweise anbieten, durch die anmeldungsgemäß beanspruchte Stufenfolge (2. und 3. Stufe) zu schließen.

Auf den ersten Blick scheint es, daß diese Frage zu bejahen ist.

6. In (2) wird die Herstellung von Terpenalkoholgemischen beschrieben, die Myrcenol als Hauptbestandteil und u.a. cis-Ocimenol als Nebenprodukt enthalten. Sie erfolgt gemäß den folgenden Stufen (Spalte 2, Zeilen 30 bis 61):

- Quaternisierung von Geranyl- und/oder Nerylchlorid mit Hilfe eines tertiärenamins zum quaternären Ammoniumsalz (Spalte 2, Zeile 64 bis Spalte 3, Zeile 13; Ansprüche 1 und 6)

- Hydratisierung dieses Salzes in 6,7-Stellung zum 7-Hydroxy-cis- und trans-Isomergemisch (Spalte 5, Zeilen 15 bis 18)

- Überführung dieser Ammoniumchloride in die entsprechenden Ammoniumbasen (Spalte 6, Zeilen 12 bis 60)

- thermische Zersetzung (Hofmann'scher Abbau) der Ammoniumbasen zu einem Gemisch aus Myrcenol und mindestens 20% cis- und trans-Ocimenol (Spalte 6, Zeile 66 bis Spalte 7, Zeile 1; Ansprüche 1 und 9).

Zwar nimmt die Herstellung von Myrcenol gemäß (2) u.a. ihren Ausgang von Geranylchlorid, das mittels eines tertiärenamins zum quaternären Ammoniumchlorid umgesetzt wird, jedoch wäre der Fachmann ohne weiteres in der Lage

gewesen, dieses Verfahren geringfügig abzuwandeln, um es auf die Nahtstelle N,N-Dialkylgeranylamin, dem Verfahrensprodukt der durch (3) nahegelegten vorangehenden Verfahrensstufe auszurichten; denn hierzu bedurfte es lediglich einer Alkylierung mit einem Alkylchlorid, die dem allgemeinen Fachwissen zuzurechnen ist.

7. Anders verhält es sich hingegen mit der zweiten Nahtstelle, nämlich dem Ausgangsprodukt für die (aus (1) bekannte) Diels-Alder-Reaktion; denn (2) lehrt, daß der Hoffmann'sche Abbau der 7-Hydroxydihydrogeranylammionumbasen ein Gemisch aus Myrcenol mit mindestens 20% cis- und trans-Ocimenol ergibt.

Wie die Beschwerdeführerin derzeit unwiderlegbar vorgebracht hat, ist aber gerade das Auftreten von trans-Ocimenol im Gemisch unvereinbar mit der hier bestehenden Aufgabe, ein Gemisch aus I und II herzustellen; denn diese Verunreinigung wird - im Gegensatz zum cis-Isomeren - bei der im Zusammenhang mit dem Gesamtverfahren ins Auge gefaßten Diels-Alder-Reaktion mit Acrolein zu einem Isomeren der angestrebten Verbindungen (I) und (II) umgesetzt, das - nach derzeit ebenfalls unwiderlegbarem Vorbringen der Beschwerdeführerin - von diesen beiden Verbindungen destillativ nicht trennbar ist und die Geruchsnote des (I), (II)-Gemisches in unerwünschter Weise verändert.

8. Dieser Schwierigkeiten hätte der Fachmann auch nicht dadurch aus dem Wege gehen können, daß er an eine destillative Abtrennung des trans-Ocimenol aus dessen Gemisch mit cis-Ocimenol und Myrcenol von der Diels-Alder-Reaktion gedacht hätte; denn nach allgemeinem Fachwissen ist auch dieses Isomeren-Gemisch durch Destillation nicht trennbar (vgl. auch FR-A- 1 456 900 (5), Beispiel 5).

Nachdem die auf den ersten Blick naheliegende Herstellungsweise bei näherer Betrachtung aufgrund der durch (2) vermittelten Kenntnis über die Bildung von trans-Ocimenol beim Hofmann'schen Abbau als nicht gangbar erscheinen mußte, hätte der Fachmann eine Reihenfolge, wie sie das anmeldungsgemäße Verfahren lehrt, als aussichtslos, weil zur Lösung der bestehenden Aufgabe ungeeignet angesehen. Unter diesen Umständen hätte er auch kein Experiment in dieser Richtung unternommen, das dann allerdings gezeigt hätte, daß entgegen der Lehre nach (2) bei Wahl der Geranylstruktur in der Ausgangssubstanz tatsächlich kein trans-Ocimenol auftritt.

Das Verfahren nach Anspruch 1 beruht daher auf erfindertätiger Tätigkeit.

9. Die Ansprüche 2 bis 10 werden von der Patentfähigkeit des Anspruchs 1 getragen.

Entscheidungsformel

Aus diesen Gründen wird wie folgt entschieden:

1. Die angefochtene Entscheidung wird aufgehoben.
2. Die Sache wird an die Vorinstanz zurückverwiesen, mit der Auflage, ein Europäisches Patent aufgrund folgender Unterlagen zu erteilen:
 - ursprünglicher Anspruch 1 mit den Änderungen vom 12.11.1982 und vom 11.02.1983
 - ursprüngliche Ansprüche 2 bis 10
 - und einer noch anzupassenden Beschreibung.

Der Geschäftsstellenbeamte:

Der Vorsitzende:

01233