

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



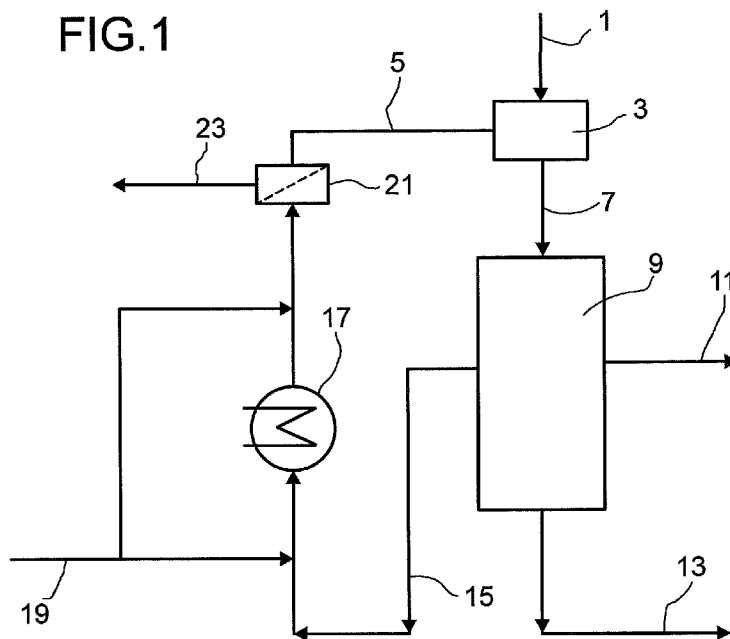
(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
10. Juni 2010 (10.06.2010)

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2010/063665 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation:
C07C 263/10 (2006.01)
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2009/066023
- (22) Internationales Anmeldedatum:
30. November 2009 (30.11.2009)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:
08170576.6 3. Dezember 2008 (03.12.2008) EP
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BASF SE** [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **KNÖSCHE, Carsten** [DE/DE]; Am Gutenbrunnen 25, 67150 Niederkirchen (DE). **MATTKE, Torsten** [DE/DE]; Reiboldstraße 14D, 67251 Freinsheim (DE). **MÜLLER, Patric** [DE/DE]; Raiffeisenstraße 1B, 67112 Mutterstadt (DE).
- (74) **Anwalt: ISENBRUCK, Günter**; Isenbruck Bösl Hörschler Wichmann LLP, Patentanwälte, Eastsite One, Seckenheimer Landstr. 4, 68163 Mannheim (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- Veröffentlicht:
— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING ISOCYANATES

(54) Bezeichnung : VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON ISOCYANATEN



(57) **Abstract:** The invention relates to a method for producing isocyanates by reacting the corresponding amines with phosgene in the gaseous phase, optionally in the presence of an inert medium. According to said method, the amine and the phosgene are first mixed and are reacted to isocyanate in a reactor, a reaction gas (1) leaving the reactor and containing isocyanate and hydrochloric acid being cooled in a quencher (3) by adding a liquid quenching medium (5), resulting in a mixture of reaction gas and quenching medium as a product stream (7). The quenching medium (5) used is a mixture which contains at least one solvent and the isocyanate and which is removed from the production process, solid particles being removed from the quenching medium (5) before it is added to the quencher (3).

(57) **Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung der korrespondierenden Amine mit Phosgen in der Gasphase, gegebenenfalls in Gegenwart eines Inertmediums, bei dem das Amin und das Phosgen zunächst gemischt werden und in einem Reaktor zum Isocyanat

umgesetzt werden, wobei ein den Reaktor verlassendes, Isocyanat und Chlorwasserstoff enthaltendes Reaktionsgas (1) in einem

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2010/063665 A1



Quench (3) durch Zugabe eines flüssigen Quenchmediums (5) abgekühlt wird, wobei ein Gemisch aus Reaktionsgas und Quenchmedium als Produktstrom (7) entsteht. Als Quenchmedium (5) wird ein Gemisch eingesetzt, das mindestens ein Lösungsmittel und Isocyanat enthält und das dem Herstellungsprozess entnommen wird, wobei in dem Quenchmedium (5) gegebenenfalls enthaltene Feststoffpartikel vor Zugabe in den Quench (3) entfernt werden.

Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten

Beschreibung

5 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung der korrespondierenden Amine mit Phosgen in der Gasphase, gegebenenfalls in Gegenwart eines Inertmediums, bei dem das Amin und das Phosgen zunächst gemischt werden und in einem Reaktor zum Isocyanat umgesetzt werden. Ein den Reaktor verlassendes, Isocyanat und Chlorwasserstoff enthaltendes Reaktionsgas wird in einem
10 Quench durch Zugabe eines flüssigen Quenchmediums abgekühlt, wobei ein Gemisch aus Reaktionsgas und Quenchmedium als Produktstrom entsteht.

Die Herstellung von Isocyanaten durch Phosgenierung der korrespondierenden Amine kann prinzipiell durch eine Flüssigphasen- oder eine Gasphasenphosgenierung erfolgen. Die Gasphasenphosgenierung zeichnet sich dadurch aus, dass eine höhere Selektivität, ein geringerer Hold-up an toxischem Phosgen sowie ein verminderter Energiebedarf erforderlich sind.
15

Bei der Gasphasenphosgenierung werden ein aminhaltiger Eduktstrom und ein phosgenhaltiger Eduktstrom jeweils in gasförmigem Zustand vermischt. Das Amin und das Phosgen setzen sich unter Freisetzung von Chlorwasserstoff (HCl) zu den entsprechenden Isocyanaten um. Der aminhaltige Eduktstrom liegt im Allgemeinen in flüssiger Phase vor und muss vor der Vermischung mit dem phosgenhaltigen Strom verdampft und gegebenenfalls überhitzt werden.
20

25 Entsprechende Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten in der Gasphase sind zum Beispiel in EP-A 1 319 655 oder EP-A 1 555 258 beschrieben.

Um Folgereaktionen zu vermeiden, ist es notwendig, das Reaktionsgemisch nach
30 Reaktionsende schnell abzukühlen. Hierzu wird zum Beispiel ein Flüssigkeitsquench eingesetzt. Ein solcher Flüssigkeitsquench ist beispielsweise in EP-A 1 403 248 oder in DE-A 10 2006 058 634 beschrieben. Das Quenchmedium, das zur Kühlung zugegeben wird, weist dabei eine Temperatur auf, die im Bereich von 50 bis 200°C liegt. Durch den eingedüsten Flüssigkeitsstrom kühlt das Reaktionsgas schnell auf Temperaturen
35 im Allgemeinen zwischen 100 und 200°C ab. Dabei entsteht ein Zwei-Phasen-Gemisch mit einer isocyanatreichen Flüssigphase und einer isocyanatarmen Gasphase. Beide werden anschließend einer gemeinsamen oder gegebenenfalls separaten Trennstufe, zum Beispiel eine Destillationsstufe zur Trennung von Chlorwasserstoff und Phosgen

auf der einen Seite und Isocyanat eventuell mit Lösungsmittel auf der anderen Seite zugeführt.

Ein Verfahren, bei dem im Quenchmedium auch das hergestellte Isocyanat enthalten
5 ist, ist in EP-A 1 935 875 beschrieben. Durch den Isocyanat-Gehalt in dem Quench-
medium lässt sich eine höhere Isocyanat-Konzentration im den Quench verlassenden
und später aufzureinigenden Produktstrom erzielen. Nachteil dieses Verfahrens, bei
dem Isocyanat in dem Quenchmedium enthalten ist, ist jedoch, dass Feststoffe durch
10 Degradation der Ausgangsstoffe und/oder der Reaktionsprodukte entstehen können,
die in die nachfolgenden Anlagenteile verschleppt werden. Die Feststoffe sammeln
sich in den Hochsiederströmen an und werden im Allgemeinen über Kolonnensümpfe
ausgeschleust. Da jedoch aus den Hochsiederströmen Flüssigkeit als Quenchmedium
entnommen wird, können im Quenchmedium Feststoffpartikel enthalten sein. Diese
15 können in den nachfolgenden Anlagenteilen zu Ablagerungen führen. Durch die fest-
stoffartigen Bestandteile und die Ablagerungen können Rohrleitungen, Regeleinrich-
tungen und andere Apparateile verstopfen. Insbesondere können die Zerstäubungs-
düsen des Quenchs verstopfen. Dies erfordert eine aufwendige Reinigung der Anlage.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Verfahren zur Herstellung von Isocya-
20 naten durch Umsetzung der korrespondierenden Amine mit Phosgen bereitzustellen,
bei dem das Quenchmedium zumindest teilweise nach Aufarbeitung in den Prozeß
zurückgeführt wird und gegebenenfalls Isocyanat enthalten kann, wobei eine höhere
Standzeit erreicht wird als bei den aus dem Stand der Technik bekannten Verfahren.

Gelöst wird die Aufgabe durch ein Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch
25 Umsetzung der korrespondierenden Amine mit Phosgen in der Gasphase, gegebenen-
falls in Gegenwart eines Inertmediums, bei dem das Amin und das Phosgen zunächst
gemischt werden und in einem Reaktor zum Isocyanat umgesetzt werden, wobei ein
den Reaktor verlassendes, Isocyanat und Chlorwasserstoff enthaltendes Reaktionsgas
30 in einem Quench durch Zugabe eines flüssigen Quenchmediums abgekühlt wird, wobei
ein Gemisch aus Reaktionsgas und Quenchmedium als Produktstrom entsteht. Als
Quenchmedium wird ein Gemisch eingesetzt, das mindestens Lösungsmittel oder Iso-
cyanat enthält und das einem der Reaktion nachgeschalteten Aufbereitungsverfahren
entnommen wird, wobei in dem Quenchmedium gegebenenfalls enthaltene Feststoff-
35 partikel vor Zugabe in den Quench entfernt werden.

Durch das Entfernen der gegebenenfalls in dem Quenchmedium enthaltenen Fest-
stoffpartikel vor Zugabe des Quenchmediums in den Quench wird vermieden, dass
sich in dem Quenchmedium enthaltene Feststoffpartikel in den Düsen ablagern und so

zu einem Verstopfen der Düsen führen. Hierdurch kann die Standzeit des Quenches gegenüber den aus dem Stand der Technik bekannten Verfahren erhöht werden.

5 Zur Herstellung des Isocyanates werden das Phosgen und das Amin vorzugsweise
zunächst einer Mischzone zugeführt, in der die Vermischung von Amin und Phosgen
zu einem Reaktionsgemisch erfolgt. Anschließend wird das Reaktionsgemisch dem
Reaktor zugeführt, in dem die Umsetzung zum Isocyanat erfolgt. Die Umsetzung von
Amin und Phosgen im Reaktor erfolgt dabei vorzugsweise in der Gasphase. Hierzu
10 liegt der Druck im Reaktor vorzugsweise im Bereich zwischen 0,3 bis 3 bar absolut,
besonders bevorzugt im Bereich von 0,8 bis 3,0 bar absolut. Die Temperatur liegt da-
bei vorzugsweise im Bereich von 250 bis 550°C, insbesondere im Bereich von 300 bis
500°C.

15 Um die Reaktion in der Gasphase durchführen zu können, ist es weiterhin bevorzugt,
das Amin und das Phosgen gasförmig zuzugeben. Hierzu weist das Amin vorzugswei-
se eine Temperatur im Bereich von 200 bis 400°C auf. Der Druck des zugegebenen
Amins liegt dabei vorzugsweise im Bereich zwischen 0,05 bis 3 bar absolut. Die Tem-
peratur des zugegebenen Phosgens liegt vorzugsweise im Bereich von 250 bis 450°C.
20 Hierzu wird das Phosgen üblicherweise vor Zugabe auf dem Fachmann bekannte Wei-
se erwärmt.

Zur Erwärmung des Phosgens und des Amins und zur Verdampfung des Amins wird
zum Beispiel eine elektrische Beheizung oder eine direkte oder indirekte Aufheizung
durch Verbrennung eines Brennstoffs eingesetzt. Als Brennstoffe werden üblicherweise
25 Brenngase, beispielsweise Erdgas, eingesetzt. Durch die Absenkung der Siedetempe-
ratur durch Absenkung des Drucks des Amins ist jedoch auch eine Beheizung, zum
Beispiel durch Wasserdampf, möglich. In Abhängigkeit von der Siedetemperatur des
Amins wird hierbei der Druck des Wasserdampfes ausgewählt. Ein geeigneter Dampf-
druck des Wasserdampfes liegt zum Beispiel im Bereich von 40 bis 100 bar. Daraus
30 ergibt sich eine Temperatur des Wasserdampfes im Bereich von 250 bis 311°C.

Im Allgemeinen ist es erforderlich, das Amin mehrstufig auf die Reaktionstemperatur zu
erwärmen. Im Allgemeinen wird das Amin hierzu zunächst vorgewärmt, dann ver-
dampft und anschließend überhitzt. Im Allgemeinen erfordert die Verdampfung die
35 längsten Verweilzeiten und führt so zu Zersetzungen des Amins. Um dies zu minimie-
ren, ist eine Verdampfung bei niedrigeren Temperaturen, wie es sich zum Beispiel
durch den niedrigeren Druck ergibt, vorteilhaft. Um nach der Verdampfung das ver-
dampfte Amin auf Reaktionstemperatur zu überhitzen, ist im Allgemeinen eine Behei-
zung mit Wasserdampf nicht ausreichend. Zur Überhitzung wird daher üblicherweise

eine elektrische Beheizung oder eine direkte oder indirekte Aufheizung durch Verbrennung eines Brennstoffs eingesetzt.

5 Im Unterschied zur Verdampfung des Amins erfolgt die Verdampfung des Phosgens im Allgemeinen bei deutlich niedrigeren Temperaturen. Aus diesem Grund kann zur Verdampfung des Phosgens im Allgemeinen Wasserdampf eingesetzt werden. Alternativ kann die Verdampfung des Phosgens auch durch Wärmeintegration erfolgen, indem zum Beispiel die im Quench gewonnene Wärme zur Verdampfung des Phosgens genutzt wird. Hierdurch kann die Verdampfung gesamtenergie-neutral erfolgen. Neben der
10 im Quench gewonnenen Wärme kann auch jeder beliebige andere Stoffstrom, der eine höhere Temperatur aufweist als die Verdampfungstemperatur des Phosgens, genutzt werden. Dies sind zum Beispiel bei einer sich an den Quench anschließenden Kondensation anfallende Kondensatströme. Jedoch ist auch die notwendige Überhitzung des Phosgens, um dieses auf Reaktionstemperatur zu erwärmen, im Allgemeinen nur
15 durch eine elektrische Beheizung oder eine direkte oder indirekte Aufheizung durch Verbrennung eines Brennstoffes möglich.

Der Reaktor, der zur Phosgenierung des Amins zur Herstellung von Isocyanaten eingesetzt wird, ist dem Fachmann bekannt. Im Allgemeinen werden als Reaktor Rohrreaktoren eingesetzt. Im Reaktor wird das Amin mit dem Phosgen zum korrespondierenden Isocyanat und Chlorwasserstoff umgesetzt. Üblicherweise wird das Phosgen in
20 Überschuss zugegeben, so dass das im Reaktor entstehende Reaktionsgas neben dem gebildeten Isocyanat und dem Chlorwasserstoff auch Phosgen enthält.

25 Amine, die zur Herstellung von Isocyanaten eingesetzt werden können, sind Monoamine, Diamine, Triamine oder höherwertige Amine. Bevorzugt werden Monoamine oder Diamine eingesetzt. Entsprechend des eingesetzten Amins ergeben sich die korrespondierenden Monoisocyanate, Diisocyanate, Triisocyanate oder höherwertigen Isocyanate. Bevorzugt werden Monoisocyanate oder Diisocyanate mit dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellt.
30

Diamine und Diisocyanate können aliphatisch, cycloaliphatisch oder aromatisch sein.

35 Cycloaliphatische Isocyanate sind solche, die mindestens ein cycloaliphatisches Ringsystem enthalten.

Aliphatische Isocyanate sind solche, die ausschließlich Isocyanatgruppen aufweisen, die an gerade oder verzweigte Ketten gebunden sind.

Aromatische Isocyanate sind solche, die mindestens eine an mindestens ein aromatisches Ringsystem gebundene Isocyanatgruppe aufweisen.

5 Im Folgenden wird die Bezeichnung (cyclo)aliphatische Isocyanate für cycloaliphatische und/oder aliphatische Isocyanate verwendet.

Beispiele für aromatische Mono- und Diisocyanate sind bevorzugt solche mit 6 bis 20 C-Atomen, beispielsweise Phenylisocyanat, monomeres 2,4'- und/oder 4,4'-Methylen-
10 di(phenylisocyanat) (MDI), 2,4- und/oder 2,6-Toluylendiisocyanat (TDI) und 1,5- oder 1,8-Naphthylendiisocyanat (NDI).

Beispiele für (cyclo)aliphatische Diisocyanate sind aliphatische Diisocyanate wie 1,4-Tetramethylendiisocyanat, 1,6-Hexamethylendiisocyanat (1,6-Diisocyanatohexan), 1,8-Octamethylendiisocyanat, 1,10-Decamethylendiisocyanat, 1,12-Dodecamethylendiisocyanat, 1,14-Tetradecamethylendiisocyanat, 1,5-Diisocyanatopentan, Neopentandiisocyanat, Derivate des Lysindiisocyanats, Tetramethylxylylendiisocyanat (TMXDI), Trimethylhexandiisocyanat oder Tetramethylhexandiisocyanat, sowie 3(beziehungsweise 4)-8(beziehungsweise 9)-Bis(isocyanatomethyl)-tricyclo-[5.2.1.0^{2,6}]-decan-Isomeren-
15 gemische, sowie cycloaliphatische Diisocyanate wie 1,4-, 1,3- oder 1,2-Diisocyanatocyclohexan, 4,4'- oder 2,4'-Di(isocyanatocyclohexyl)methan, 1-Isocyanato-3,3,5-trimethyl-5-(isocyanatomethyl)cyclohexan (Isoforondiisocyanat), 1,3- oder 1,4-Bis(isocyanatomethyl)cyclohexan, 2,4- oder 2,6-Diisocyanato-1-methylcyclohexan.

Bevorzugte (cyclo)aliphatische Diisocyanate sind 1,6-Diisocyanatohexan, 1-
25 Isocyanato-3,3,5-trimethyl-5-(isocyanato-methyl)cyclohexan und 4,4'-Di(isocyanatocyclohexyl)methan. Besonders bevorzugt sind 1,6-Diisocyanatohexan, 1-Isocyanato-3,3,5-trimethyl-5-(isocyanatomethyl)cyclohexan, 1,5-Diisocyanatopentan und 4,4'-Di(isocyanatocyclohexyl)methan.

30 Beispiele für aromatische Diisocyanate sind 2,4-, 2,6-Toluylendiisocyanat, Methylen-diphenylisocyanat oder Isomerenmische davon.

Amine, die bei dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Reaktion zu den korrespondierenden Isocyanaten eingesetzt werden, sind solche, bei denen das Amin, die korrespondierenden Zwischenprodukte und die korrespondierenden Isocyanate bei den
35 gewählten Reaktionsbedingungen gasförmig vorliegen. Bevorzugt sind Amine, die sich während der Dauer der Reaktion unter den Reaktionsbedingungen zu höchstens 2 Mol-%, besonders bevorzugt zu höchstens 1 Mol-% und ganz besonders bevorzugt zu höchstens 0,5 Mol-% zersetzen. Besonders geeignet sind hier Amine, insbesondere

Diamine, auf Basis von aliphatischen oder cycloaliphatischen Kohlenwasserstoffen mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen. Beispiele hierfür sind 1,6-Diaminohexan, 1,5-Diaminopentan, 1,3-Bis(aminomethyl)cyclohexan, 1-Amino-3,3,5-trimethyl-5-aminomethylcyclohexan (IPDA) und 4,4-Diaminodicyclohexylmethan. Bevorzugt verwendet werden 1,6-Diaminohexan (HDA) und 1,5-Diaminopentan.

Ebenfalls können für das erfindungsgemäße Verfahren aromatische Amine verwendet werden, die ohne signifikante Zersetzung in die Gasphase überführt werden können. Beispiele für bevorzugte aromatische Amine sind Toluylendiamin (TDA), als 2,4- oder 2,6-Isomer oder als Gemisch davon, beispielsweise als 80:20 bis 65:35 (Mol/Mol)-Gemisch, Diaminobenzol, 2,6-Xylidin, Naphthyldiamin (NDA) und 2,4'- oder 4,4'-Methylen(diphenyldiamin) (MDA) oder Isomerengemische davon. Bevorzugt sind unter diesen die Diamine, besonders bevorzugt sind 2,4- und/oder 2,6-TDA oder 2,4'- und/oder 4,4'-MDA.

Zur Herstellung von Monoisocyanaten können ebenfalls aliphatische, cycloaliphatische oder aromatische Amine, üblicherweise Monoamine, eingesetzt werden. Als aromatisches Monoamin ist insbesondere Anilin bevorzugt.

Bei der Gasphasenphosgenierung ist es anzustreben, dass die im Reaktionsverlauf auftretenden Verbindungen, also Edukte (Amin und Phosgen), Zwischenprodukte (insbesondere die intermediär entstehenden Mono- und Dicarbamoylchloride), Endprodukte (Isocyanat), sowie gegebenenfalls zudosierte inerte Verbindungen, unter den Reaktionsbedingungen in der Gasphase verbleiben. Sollten diese oder andere Komponenten sich aus der Gasphase zum Beispiel an der Reaktorwand oder anderen Apparatebauteilen abscheiden, so kann durch diese Abscheidungen der Wärmeübergang oder die Durchströmung der betroffenen Bauteile unerwünscht verändert werden. Dies gilt insbesondere für Auftreten der Aminhydrochloride, die sich aus freien Aminogruppen und Chlorwasserstoff bilden, da die resultierenden Aminhydrochloride leicht ausfallen und nur schwer wieder verdampfbar sind.

Neben dem Einsatz eines Rohrreaktors ist es auch möglich, im Wesentlichen quaderförmige Reaktionsräume, beispielsweise Plattenreaktoren zu verwenden. Auch jeder beliebige andere Querschnitt des Reaktors ist möglich.

Um die Bildung von Nebenprodukten zu vermeiden, ist es bevorzugt, Phosgen im Überschuss zuzuführen. Um nur den für die Reaktion notwendigen Anteil an Aminen zuzuführen, ist es möglich, das Amin mit einem Inertgas zu mischen. Durch den Anteil an Inertgas im Amin lässt sich die Menge des zugeführten Amins bei vorgegebener

Geometrie der Zufuhröffnungen für das Amin und das Phosgen einstellen. Inertmedien, die zugegeben werden können, sind solche, die im Reaktionsraum gasförmig vorliegen und nicht mit den im Reaktionsverlauf auftretenden Verbindungen reagieren. Als Inertmedium können zum Beispiel Stickstoff, Edelgase wie Helium oder Argon, Aromaten wie Chlorbenzol, o-Dichlorbenzol, Trichlorbenzol, Toluol, Xylol, Chlornaphtalin, Decahydronaphtalin, Kohlenstoffdioxid oder Kohlenstoffmonoxid eingesetzt werden. Bevorzugt werden jedoch Stickstoff und/oder Chlorbenzol als Inertmedium verwendet.

Alternativ ist es jedoch auch möglich, zum Beispiel um einen zu großen Überschuss an Phosgen zu vermeiden, das Inertmedium dem Phosgen zuzumischen.

Im Allgemeinen wird das Inertmedium in einer Menge zugesetzt, dass das Verhältnis der Gasvolumina von Inertmedium zu Amin beziehungsweise zu Phosgen weniger als 0,0001 bis 30, bevorzugt weniger als 0,01 bis 15 und besonders bevorzugt weniger als 0,1 bis 5 beträgt.

Um die Bildung unerwünschter Nebenprodukte zu reduzieren beziehungsweise zu vermeiden und weiterhin auch eine Zersetzung des gebildeten Isocyanats zu unterbinden, wird das Reaktionsgas unmittelbar nach der Reaktion in einem Quench abgekühlt. Hierzu wird ein vorzugsweise flüssiges Quenchmedium zugegeben. Durch Erwärmung oder Verdampfung des Quenchmediums nimmt dieses Wärme auf und führt zu einer schnellen Abkühlung des Reaktionsgases.

Erfindungsgemäß enthält das Quenchmedium zumindest einen Teil des den Quench verlassenden Stoffgemischs. Dieser enthält im Allgemeinen gegebenenfalls eingesetztes Lösungsmittel, bei der Reaktion gebildetes Isocyanat, sowie gegebenenfalls Reste an Phosgen und HCl.

Um zu vermeiden, dass sich in Rohrleitungen, Regeleinrichtungen und sonstigen Apparateilen, insbesondere in den Zerstäuberdüsen des Quenchs, Ablagerungen bilden, werden gegebenenfalls im Quenchmedium enthaltene Feststoffpartikel vor Zugabe in den Quench entfernt.

In einer ersten Ausführungsform werden die gegebenenfalls in dem Quenchmedium enthaltenen Feststoffpartikel in einem Hydrozyklon oder einem Filter aus dem Quenchmedium entfernt. Der Filter oder der Hydrozyklon kann dabei an jeder beliebigen Stelle vor den Zerstäuberdüsen positioniert sein.

Wenn zur Abtrennung der gegebenenfalls im Quenchmedium enthaltenen Feststoffpartikel ein Filter eingesetzt wird, so eignet sich jeder beliebige, dem Fachmann bekannte Filter. Geeignete Filter sind zum Beispiel kontinuierlich wie auch diskontinuierlich arbeitende Apparate wie Oberflächen- oder Tiefenfilter, beispielsweise Siebfilter, Nutschenfilter, Kerzenfilter, Blattfilter, Tiefenfilter, Kammerfilter und Membranfilter. Diese Filter können über Druck (Druckfilter) oder über Unterdruck (Saugfilter) betrieben werden.

Neben Filtern können auch Zentrifugen, beispielsweise Schälzentrifugen, Tellerzentrifugen, Siebzentrifugen oder Schubzentrifugen oder Schwerkraftabscheider zum Abtrennen von partikulären Bestandteilen eingesetzt werden.

In einer alternativen Ausführungsform werden die gegebenenfalls in dem Quenchmedium enthaltenen Feststoffpartikel durch Verdampfung und Rekondensation aus dem Quenchmedium entfernt. Durch die Verdampfung gehen flüssige Bestandteile des Quenchmediums in die Dampfphase über und werden anschließend wieder auskondensiert. Feststoffpartikel und schwersiedende Bestandteile werden auf diese Weise abgetrennt. Die Verdampfung und Rekondensation kann zum Beispiel in einer Destillationskolonne durchgeführt werden. Alternativ ist es auch möglich, einen beliebigen Verdampfer zum Verdampfen einzusetzen und diesem einen Kondensator nachzuschalten.

Um eine schnelle Abkühlung des Reaktionsgases im Quench zu erzielen, wird das Quenchmedium im Allgemeinen flüssig zugegeben. Die Temperatur des Quenchmediums liegt dabei vorzugsweise im Bereich von 0 bis 250 °C, insbesondere im Bereich von 20 bis 220 °C. Durch das Eindüsen des Quenchmediums in das heiße Reaktionsgas wird das Quenchmedium erwärmt und/oder verdampft. Die für das Erwärmen und die Verdampfung des Quenchmediums notwendige Wärme wird dem Reaktionsgas entzogen und das Reaktionsgas wird auf diese Weise abgekühlt. Die Temperatur, auf die das Reaktionsgas abgekühlt wird, lässt sich zum Beispiel durch die Menge und die Temperatur des zugegebenen Quenchmediums einstellen.

Um die Temperatur, mit der das Quenchmedium in den Quench zugegeben wird, einzustellen, wird das Quenchmedium vorzugsweise durch einen Wärmetauscher geleitet. Je nach Eintrittstemperatur des Quenchmediums in den Wärmetauscher kann das Quenchmedium in diesem erwärmt oder abgekühlt werden. Ein Abkühlen ist zum Beispiel dann erforderlich, wenn der Teil des Produktstromes, der als Quenchmedium eingesetzt wird, direkt im Anschluss an den Quench entnommen wird. Ein Erwärmen kann sich zum Beispiel dann ergeben, wenn der Teil des Produktstromes, der als Quenchmedium eingesetzt wird, am Ende der Aufbereitungsstrecke entnommen wird

und eine Temperatur aufweist, die niedriger ist als die gewünschte Temperatur, mit der das Quenchmedium in den Quench zugegeben werden soll. Im Allgemeinen wird es jedoch erforderlich sein, das Quenchmedium vor Zugabe in den Quench abzukühlen.

- 5 Um Lösungsmittelverluste im Quenchmedium auszugleichen, ist es bevorzugt, dem Quenchmedium vor Zugabe in den Quench Lösungsmittel zuzugeben. Geeignete Lösungsmittel, die im Quenchmedium enthalten sind, sind zum Beispiel gegebenenfalls mit Halogen substituierte Kohlenwasserstoffe. Vorzugsweise ist das Lösungsmittel, das im Quenchmedium enthalten ist, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Mono-
- 10 chlorbenzol, Dichlorbenzol, Trichlorbenzol, Hexan, Benzol, 1,3,5-Trimethylbenzol, Nitrobenzol, Anisol, Chlortoluol, o-Dichlorbenzol, Diethylisophtalat, Tetrahydrofuran, Dimethylformamid, Xylol, Chlornaphthalin, Decahydronaphthalin und Toluol.

- Der Anteil an Isocyanat im Quenchmedium kann im Bereich von 0 bis 100 % liegen. So
- 15 liegt der Anteil an Isocyanat bei einem reinen Leichtsiederquench im Allgemeinen bei 0 % und bei einem reinen Hochsiederquench bei 100 %. Als Leichtsiederquench wird ein mit im Wesentlichen reinem Lösungsmittel als Quenchmedium betriebener Quench verstanden und als Hochsiederquench ein mit im Wesentlichen reinen Isocyanat betriebener Quench. Je nach Abzweigung des Quenchmediums im Prozess ist aber auch
- 20 jede beliebige Zusammensetzung, die Lösungsmittel und Isocyanat enthält, möglich.

- Zur weiteren Behandlung des Produktstromes schließen sich an den Quench in einer weiteren Ausführungsform weitere Stufen zur Abkühlung des Reaktionsgases an. In den einzelnen Stufen zur Abkühlung erfolgt dabei jeweils eine weitere Abkühlung des
- 25 Produktstromes bis zum Erreichen der gewünschten Endtemperatur, mit der der Produktstrom beispielsweise einer nachfolgenden Aufarbeitung zugeführt wird.

- Die weiteren Stufen zur Abkühlung, die sich an den Quench anschließen können, können zum Beispiel weitere Quenche oder Kondensatoren oder beliebige andere Stufen
- 30 zur Abkühlung, die dem Fachmann bekannt sind, sein. Bevorzugt ist mindestens eine der sich an den Quench anschließenden Stufen zur Abkühlung des Produktstromes ein Kondensator. Als Kondensator eignet sich dabei jede beliebige, dem Fachmann bekannte Kondensatorbauart. Üblicherweise wird als Kondensator ein Wärmetauscher eingesetzt, der von einem Kühlmedium durchströmt wird. Als Kühlmittel kann zum Bei-
- 35 spiel Wasser oder gekühltes Lösungsmittel eingesetzt werden. In diesem Fall kondensiert das Gas zumindest teilweise an den Wandungen des Kondensators aus. Die so entstehende Flüssigkeit läuft ab und wird gesammelt und dem Kondensator entnommen.

Nach dem Kondensieren des Produktstromes wird im Allgemeinen eine Aufbereitung angeschlossen. So ist es zum Beispiel möglich, dass das auskondensierte Gemisch in einem Lösungsmittel gewaschen wird. Als Lösungsmittel können zum Beispiel die gleichen Stoffe eingesetzt werden, die auch als Quenchmedium eingesetzt werden können.

5

Bei der Wäsche wird das Isocyanat selektiv in die Waschlösung überführt. Anschließend wird, bevorzugt durch Rektifikation, das erhaltene Gemisch in Isocyanat, Lösungsmittel, Phosgen und Chlorwasserstoff aufgetrennt.

10

Alternativ zur Abkühlung des Produktstromes ist es auch möglich, dass der Produktstrom nach Austritt aus dem Quench einer Trennstufe zugeführt wird. Eine entsprechende Trennstufe kann sich alternativ jedoch auch zum Beispiel dem Kondensator anschließen. Bevorzugt schließt sich jedoch die Trennstufe direkt an den Quench an. Als Trennstufen eignen sich zum Beispiel Destillationskolonnen oder Wäscher.

15

Wenn die Trennstufe ein Wäscher ist, so wird der den Quench verlassende Produktstrom vorzugsweise – wie zuvor beschrieben – mit einem Lösungsmittel gewaschen. Hierbei wird das Isocyanat selektiv in die Waschlösung überführt. An die Wäsche schließt sich dann eine Trennung, bevorzugt mittels Rektifikation, an.

20

Wenn die Trennstufe eine Destillationskolonne ist, so wird der gasförmige Produktstrom der Rektifikationskolonne zugeführt. Die Rektifikationskolonne wird vorzugsweise so betrieben, dass die Temperatur am Kopf der Rektifikationskolonne niedriger ist als die Siedetemperatur des Produktstromes. Auf diese Weise kondensieren in der Destillationskolonne selektiv einzelne Bestandteile des Produktstromes aus und können der Kolonne am Sumpf, über Kopf und gegebenenfalls über Seitenabzüge entnommen werden.

25

Wenn die Trennstufe ein Wäscher ist, so eignet sich insbesondere ein Waschturm, in dem aus dem gasförmigen Produktstrom das gebildete Isocyanat durch Kondensation in einem inerten Lösungsmittel abgetrennt wird, während überschüssiges Phosgen, Chlorwasserstoff und gegebenenfalls das Inertmedium den Waschturm gasförmig durchlaufen. Bevorzugt wird dabei die Temperatur des inerten Lösungsmittels so gewählt, dass das zum Amin gehörige Carbamoylchlorid im gewählten Waschmedium gelöst vorliegt. Besonders bevorzugt wird dabei die Temperatur des inerten Lösungsmittels oberhalb der Schmelztemperatur des zum Amin gehörigen Carbamoylchlorids gehalten.

30

35

Als Wäscher eignet sich jeder beliebige, dem Fachmann bekannte Wäscher. So können zum Beispiel Rührbehälter oder andere herkömmliche Apparaturen, beispielsweise Kolonnen oder Mixer-Settler-Apparaturen eingesetzt werden.

- 5 Das Waschen und die Aufarbeitung des den Quench verlassenden Gemischs aus Reaktionsgas und Quenchmedium erfolgt dabei im Allgemeinen wie beispielsweise in WO-A 2007/028715 beschrieben.

10 Wenn zur Aufbereitung des Produktstromes ein Kondensator eingesetzt wird, ist es bevorzugt, das Quenchmedium dem Kondensator zu entnehmen. Bei einer Aufbereitung durch Rektifikation erfolgt vorzugsweise eine Abtrennung des als Quenchmedium eingesetzten Lösungsmittels. Das Lösungsmittel enthält in diesem Fall noch Anteil an Isocyanaten. Das so abgetrennte Gemisch aus Lösungsmittel und Isocyanat wird dann als Quenchmedium eingesetzt.

15 Wenn ein Teil des Produktstromes als Quenchmedium eingesetzt wird, so ist es möglich, diesen Teil zum Beispiel nach dem Abkühlen aus dem Produktstrom abzuzweigen. Alternativ kann der als Quenchmedium eingesetzte Teil des Produktstromes auch nach einer sich an den Quench anschließenden Aufarbeitung aus dem Produktstrom
20 abgezweigt werden.

Im Folgenden wird die Erfindung beispielhaft an einer Zeichnung näher beschrieben.

25 Die einzige Figur zeigt eine schematische Darstellung des erfindungsgemäßen Verfahrens.

30 Ein einen Reaktor zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung der korrespondierenden Amine mit Phosgen in der Gasphase verlassendes, Isocyanat und Chlorwasserstoff enthaltendes Reaktionsgas 1 wird einem Quench 3 zugeführt. Durch Zugabe eines Quenchmediums 5 in den Quench 3 wird das Reaktionsgas 1 unter Bildung eines Reaktionsgas und Quenchmedium enthaltenden Produktstromes 7 abgekühlt. Der Produktstrom 7 enthält im Allgemeinen eine flüssige und eine gasförmige Phase.

35 Der Produktstrom 7 wird in der hier dargestellten Ausführungsform einer Vorrichtung zur Phasentrennung 9 zugeführt. Als Phasentrenner 9 eignet sich jede beliebige, dem Fachmann bekannte Vorrichtung, in der eine flüssige Phase von einer gasförmigen Phase getrennt werden kann.

Der Vorrichtung zur Phasentrennung 9 wird eine Gasphase 11 und eine Flüssigphase 13 entnommen. Die Gasphase enthält im Allgemeinen Phosgen, HCl, gegebenenfalls Inertmedium und Lösungsmittel, und die Flüssigphase 13 enthält im Allgemeinen das Isocyanat, schwersiedende Nebenprodukte und gegebenenfalls Lösungsmittel.

5

Als weiterer Strom wird der Vorrichtung zur Phasentrennung 9 in der hier dargestellten Ausführungsform auch Quenchmedium 15 entnommen. Das Quenchmedium 15 kann dabei gegebenenfalls Feststoffpartikel enthalten. Im Allgemeinen enthält das Quenchmedium 15 Lösungsmittel und Isocyanat. Das Quenchmedium 15 wird einem Wärmetauscher 17 zugeführt, in dem dieses auf die gewünschte Zufuhrtemperatur in den Quench 3 abgekühlt wird. Gegebenenfalls mit der Gasphase 11 oder der Flüssigphase 13 ausgeschleustes Lösungsmittel wird über eine Lösungsmittelzufuhr 19 ergänzt. Das Lösungsmittel 19 kann dabei alternativ vor dem Wärmetauscher 17 oder nach dem Wärmetauscher 17 zugeführt werden. Auch ist es möglich, den Lösungsmittelstrom aufzuspalten und einen Teil des Lösungsmittels vor dem Wärmetauscher 17 und einen Teil des Lösungsmittels nach dem Wärmetauscher 17 zuzuführen. Je nach Temperatur des Lösungsmittels erfolgt durch die Zugabe des Lösungsmittels 19 eine weitere Abkühlung des Quenchmediums 15. Die Lösungsmittelzufuhr 19 kann dabei aus einer beliebigen Verfahrensstufe gespeist werden, oder es wird Lösungsmittel von außerhalb zugegeben.

10

15

20

An den Wärmetauscher 17 schließt sich mindestens ein Partikelabscheider 21 an. Als Partikelabscheider 21 kann zum Beispiel ein Hydrozyklon oder ein Filter eingesetzt werden. Alternativ ist es auch möglich, als Partikelabscheider zum Beispiel eine Destillationskolonne oder einen Verdampfer und einen Kondensator einzusetzen. Im Partikelabscheider 21 werden gegebenenfalls im Quenchmedium 5 enthaltene Feststoffpartikel entfernt. In Abhängigkeit vom eingesetzten Partikelabscheider 21 können die Feststoffpartikel zum Beispiel als Schlamm, als Filterkuchen oder auch als Sumpf einer Destillation entnommen werden. Der Feststoff enthaltende Strom ist mit Bezugszeichen 23 bezeichnet.

25

30

Wenn mehrere Partikelabscheider 21 eingesetzt werden, so können mehrere gleichartige Partikelabscheider oder unterschiedliche Partikelabscheider in Reihe oder parallel eingesetzt werden. So ist es zum Beispiel möglich, mehrere Filter, mehrere Hydrozyklone oder auch Filter und Hydrozyklone einzusetzen. Wenn mehrere Filter als Partikelabscheider 21 eingesetzt werden, so ist es zum Beispiel möglich, mehrere Filter mit unterschiedlicher Porengröße einzusetzen, wobei die Porengröße in Strömungsrichtung des Quenchmediums von Filter zu Filter abnimmt. Es kann aber auch vorteilhaft sein, mehrere gleichartige Partikel-Abscheider parallel einzusetzen und wechselseitig

35

zu regenerieren. Das so von Feststoffpartikeln gereinigte Quenchmedium wird dann dem Quench 3 zur Abkühlung des Reaktionsgases 1 zugeführt.

5 Neben der hier dargestellten Ausführungsform, bei der das Quenchmedium 15 der
Vorrichtung zur Phasentrennung 9 entnommen wird, ist es alternativ auch möglich,
direkt einen Teil des Produktstroms 7 nach dem Verlassen des Quenches 3 abzuzwei-
gen. Auch ist es möglich, einen Teil der Flüssigphase 13, die der Vorrichtung zur Pha-
sentrennung 9 entnommen wird, als Quenchmedium abzuzweigen. Es ist aber auch
10 möglich den Quench nur über die Lösungsmittelzufuhr 19 zu speisen. In diesem Fall
verlässt alles flüssige Produkt die Vorrichtung zur Phasentrennung als Flüssigphase
13.

Alternativ ist es weiterhin möglich, anstelle einer Vorrichtung zur Phasentrennung an-
dere Stufen zur Aufarbeitung einzusetzen. In diesem Fall ist es ebenfalls möglich an
15 jeder beliebigen Position einen Teil des Produktstromes zu entnehmen, um diesen
nach entsprechender Aufarbeitung zum Beispiel durch Kondensation und Partikelab-
scheidung als Quenchmedium 5 einzusetzen.

Bezugszeichenliste

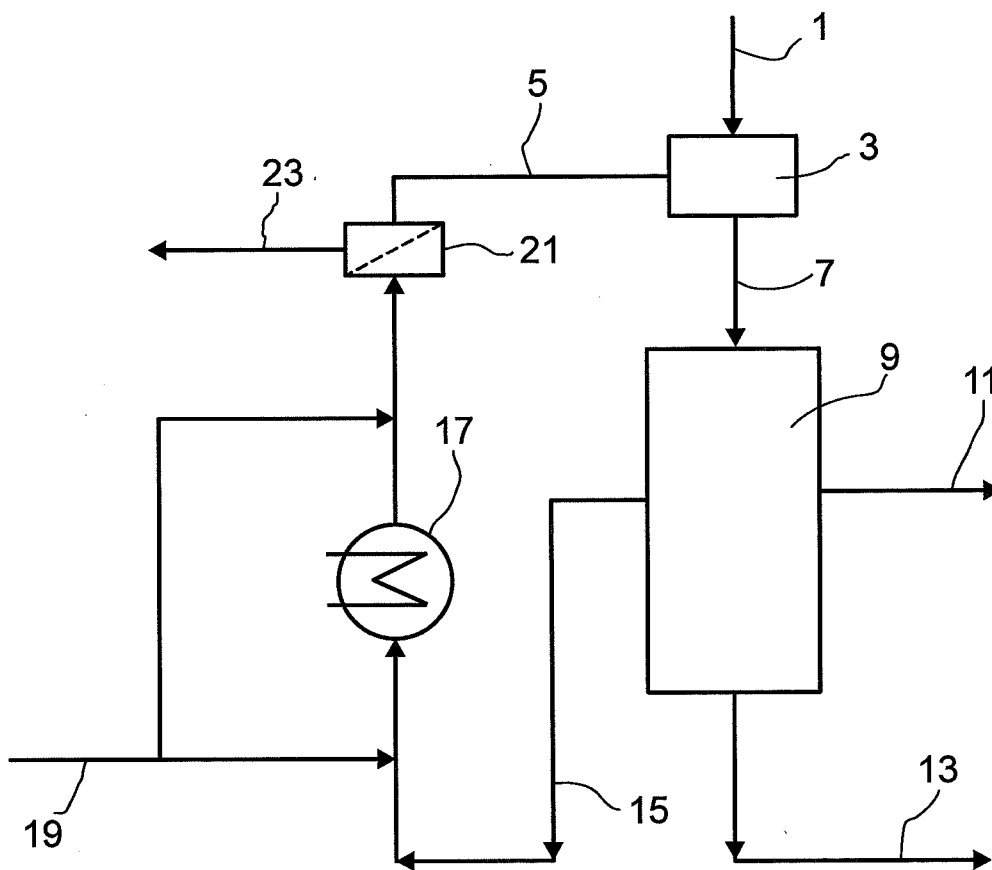
	1	Reaktionsgas
5	3	Quench
	5	Quenchmedium
10	7	Produktstrom
	9	Vorrichtung zur Phasentrennung
	11	Gasphase
15	13	Flüssigphase
	15	Quenchmedium
20	17	Wärmetauscher
	19	Lösungsmittel
	21	Partikelabscheider
25	23	Feststoff enthaltender Strom

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung der korrespondierenden Amine mit Phosgen in der Gasphase, gegebenenfalls in Gegenwart eines Inertmediums, bei dem das Amin und das Phosgen zunächst gemischt werden und in einem Reaktor zum Isocyanat umgesetzt werden, wobei ein den Reaktor verlassendes, Isocyanat und Chlorwasserstoff enthaltendes Reaktionsgas (1) in einem Quench (3) durch Zugabe eines flüssigen Quenchmediums (5) abgekühlt wird, wobei ein Gemisch aus Reaktionsgas und Quenchmedium als Produktstrom (7) entsteht, dadurch gekennzeichnet, dass als Quenchmedium (5) ein Gemisch eingesetzt wird, das mindestens ein Lösungsmittel oder Isocyanat enthält und das einem der Reaktion nachgeschalteten Aufbereitungsverfahren entnommen wird, wobei in dem Quenchmedium (5) gegebenenfalls enthaltene Feststoffpartikel vor Zugabe in den Quench (3) entfernt werden.
2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die gegebenenfalls in dem Quenchmedium (5) enthaltenen Feststoffpartikel in einem Hydrozyklon, einem Filter, einer Zentrifuge oder einem Schwerkraftabscheider (21) aus dem Quenchmedium entfernt werden.
3. Verfahren gemäß Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Filter ein Siebfilter, Nutschenfilter, Kerzenfilter, Blattfilter, Tiefenfilter, Kammerfilter oder Membranfilter ist.
4. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die gegebenenfalls in dem Quenchmedium (5) enthaltenen Feststoffpartikel durch Verdampfung und Rekondensation aus dem Quenchmedium entfernt werden.
5. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass das Quenchmedium (5) als Lösungsmittel einen gegebenenfalls mit Halogen substituierten Kohlenwasserstoff enthält.
6. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass das Quenchmedium (5) ein Lösungsmittel enthält, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Monochlorbenzol, Dichlorbenzol, Trichlorbenzol, Hexan, Benzol, 1,3,5-Trimethylbenzol, Nitrobenzol, Anisol, Chlortoluol, o-Dichlorbenzol, Diethylisophthalat, Tetrahydrofuran, Dimethylformamid, Xylol, Chlornaphthalin, Decahydronaphthalin und Toluol.

7. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass das Quenchmedium (5) zumindest einen Teil des Produktstromes (7) enthält.
- 5 8. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass sich an den Quench (3) weitere Stufen zur Abkühlung des Reaktionsgases anschließen.
- 10 9. Verfahren gemäß Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens eine der sich an den Quench (3) anschließenden Stufen zur Abkühlung des Reaktionsgases ein Kondensator ist.
- 15 10. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass der als Quenchmedium (5) eingesetzte Teil des Produktstroms (7) nach einer sich an den Quench (3) anschließende Aufarbeitung aus dem Produktstrom abgezweigt wird.
11. Verfahren gemäß Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass die sich an den Quench (3) anschließende Aufarbeitung eine Trennstufe umfasst.
- 20 12. Verfahren gemäß Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Trennstufe eine Destillationskolonne oder ein Wäscher ist.

FIG. 1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2009/066023

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C07C263/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 935 875 A1 (BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]) 25 June 2008 (2008-06-25) cited in the application the whole document	1-12
A	EP 1 403 248 A1 (BAYER AG [DE] BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]) 31 March 2004 (2004-03-31) cited in the application paragraph [[0013]]; claims; figure; example	1-12
A	WO 2005/123665 A1 (BASF AG [DE]; KNOESCHE CARSTEN [DE]; WOELFERT ANDREAS [DE]; DAISS ANDR) 29 December 2005 (2005-12-29) claims; example	1-12

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 February 2010

Date of mailing of the international search report

02/03/2010

Name and mailing address of the ISA/
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Zervas, Brigitte

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2009/066023

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 1935875	A1	25-06-2008	CN 101200437 A 18-06-2008
			DE 102006058634 A1 19-06-2008
			JP 2008150372 A 03-07-2008
			KR 20080055661 A 19-06-2008
			US 2008167490 A1 10-07-2008
EP 1403248	A1	31-03-2004	AT 327217 T 15-06-2006
			CA 2442467 A1 30-03-2004
			CN 1496977 A 19-05-2004
			DE 10245704 A1 01-04-2004
			ES 2265543 T3 16-02-2007
			HK 1065998 A1 25-01-2008
			JP 2004123745 A 22-04-2004
			MX PA03008808 A 15-04-2004
			US 2004068137 A1 08-04-2004
WO 2005123665	A1	29-12-2005	BR PI0512358 A 04-03-2008
			CN 1972905 A 30-05-2007
			DE 102004030164 A1 19-01-2006
			EP 1761483 A1 14-03-2007
			JP 2008503532 T 07-02-2008
			KR 20070036142 A 02-04-2007
			US 2008027242 A1 31-01-2008

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2009/066023

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

INV. C07C263/10

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

C07C

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 935 875 A1 (BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]) 25. Juni 2008 (2008-06-25) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument -----	1-12
A	EP 1 403 248 A1 (BAYER AG [DE] BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]) 31. März 2004 (2004-03-31) in der Anmeldung erwähnt Absatz [[0013]]; Ansprüche; Abbildung; Beispiel -----	1-12
A	WO 2005/123665 A1 (BASF AG [DE]; KNOESCHE CARSTEN [DE]; WOELFERT ANDREAS [DE]; DAISS ANDR) 29. Dezember 2005 (2005-12-29) Ansprüche; Beispiel -----	1-12

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen Siehe Anhang Patentfamilie

- | | |
|--|---|
| <p>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</p> <p>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p> | <p>"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p> |
|--|---|

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
18. Februar 2010	02/03/2010

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Zervas, Brigitte
--	---

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2009/066023

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 1935875	A1	25-06-2008	CN	101200437 A	18-06-2008
			DE	102006058634 A1	19-06-2008
			JP	2008150372 A	03-07-2008
			KR	20080055661 A	19-06-2008
			US	2008167490 A1	10-07-2008
			<hr/>		
EP 1403248	A1	31-03-2004	AT	327217 T	15-06-2006
			CA	2442467 A1	30-03-2004
			CN	1496977 A	19-05-2004
			DE	10245704 A1	01-04-2004
			ES	2265543 T3	16-02-2007
			HK	1065998 A1	25-01-2008
			JP	2004123745 A	22-04-2004
			MX	PA03008808 A	15-04-2004
			US	2004068137 A1	08-04-2004
			<hr/>		
WO 2005123665	A1	29-12-2005	BR	PI0512358 A	04-03-2008
			CN	1972905 A	30-05-2007
			DE	102004030164 A1	19-01-2006
			EP	1761483 A1	14-03-2007
			JP	2008503532 T	07-02-2008
			KR	20070036142 A	02-04-2007
			US	2008027242 A1	31-01-2008
			<hr/>		