

Brevet N°

88015

du 09 octobre 1991

Titre délivré - 1 JUIN 1992

GRAND-DUCHÉ DE LUXEMBOURG



Monsieur le Ministre
de l'Économie et des Classes Moyennes
Service de la Propriété Intellectuelle
LUXEMBOURG

BL-7525
(ETF/aw)

Demande de Brevet d'Invention

I. Requête

La Société dite: JELLALABAD LTD., Vale Road, Arklow, Co. Wicklow/ Irlande (2)

Représentée par: FREYLINGER Ernest T., MEYERS Ernest, OFFICE DE BREVETS FREYLINGER & ASSOCIES, 321, route d'Arlon, B.P.1, L-8001 Strassen/ Luxembourg (3)

dépose(nt) ce neuf octobre mil neuf cent quatre-vingt-onze (4)
à 15.00 heures, au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, à Luxembourg:

1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant:

"Methode und Apparat zur Destillation von höherschmelzenden chemischen Verbindungen" (5)

B 01 D

2. la description en langue allemande de l'invention en trois exemplaires:

3. 1 (une) planches de dessin, en trois exemplaires:

4. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg, le 09 octobre 1991 :

la délégation de pouvoir, datée de le :

6. le document d'ayant cause (autorisation):

déclare(nt) en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'(es) inventeur(s) est (sont): (6)

Eoin QUINN, Seabank, Arklow, Co. Wicklow/ Irlande

Dr. Wilhelm SCHULER, Am Elisabethenbrunnen 17, D-6380 Bad Homburg/ Allemagne

revendique(nt) pour la susdite demande de brevet la priorité d'une (des) demande(s) de (7)
déposée(s) en (8)

le (9)

sous le N° (10)

au nom de (11)

élit(é lisent) domicile pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg 321, route d'Arlon, B.P.1, L-8001 Strassen/ Luxembourg (12)

solicite(nt) la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les annexes susmentionnées.

avec ajournement de cette délivrance à mois. (13)

L'un des mandataires: (14)

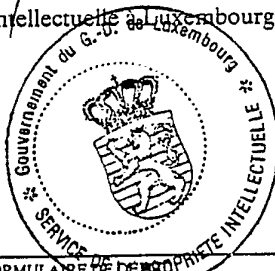
II. Procès-verbal de Dépôt

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, Service de la Propriété Intellectuelle de Luxembourg, en date du: 09 octobre 1991

à 15.00 heures

Pr. le Ministre de l'Économie et des Classes Moyennes,

Le chef du service de la propriété intellectuelle,



A 68007

EXPLICATIONS RELATIVES AU FORMULAIRE DE DEMANDE DE BREVET principal N° du - (2) inscrire les nom, prénom, profession, (1) s'il y a lieu "Demande de certificat d'addition au brevet principal" à la demande de brevet principal N° du - (3) inscrire l'adresse du demandeur, lorsque celui-ci est un particulier ou les dénomination sociale, forme juridique, adresse du siège social, lorsque le demandeur est une personne morale - (4) inscrire les nom, prénom, adresse du mandataire agréé, conseil en propriété industrielle, muni d'un pouvoir spécial, s'il y a lieu: "représenté par agissant en qualité de mandataire" - (5) date de dépôt en toutes lettres - (6) inscrire les nom, prénom, adresse des inventeurs ou l'indication "(voir) désignation séparée (suivra)", lorsque la désignation se fait ou se fera dans un document séparé, ou encore l'indication "ne pas mentionner", lorsque l'inventeur signe ou signera un document de non-mention à joindre à une désignation séparée présente ou future - (7) brevet, certificat d'addition, modèle d'utilité, brevet européen (CBE), protection internationale (PCT) - (8) Etat dans lequel le premier dépôt a été effectué ou, le cas échéant, Etats désignés dans la demande européenne ou internationale prioritaire - (9) date du premier dépôt - (10) numéro du premier dépôt complet, le cas échéant, par l'invention de l'Office receveur - (11) nom du titulaire du premier dépôt - (12) adresse du demandeur, s'il est différent de l'adresse du demandeur au Grand-Duché de Luxembourg - (13) date de dépôt

Brevet N° **88015**
du **09 octobre 1991**
Titre délivré _____



Monsieur le Ministre
de l'Économie et des Classes Moyennes
Service de la Propriété Intellectuelle
LUXEMBOURG

Demande de Brevet d'Invention

I. Requête

La Société dite: JELLALABAD LTD., Vale Road, Arklow, Co. Wicklow/ Irlande (2)

Représentée par: FREYLINGER Ernest T., MEYERS Ernest, OFFICE DE BREVETS FREYLINGER & ASSOCIES, 321, route d'Arlon, B.P.1, L-8001 Strassen/ Luxembourg (3)

dépose(nt) ce neuf octobre mil neuf cent quatre-vingt-onze (4)
à 15.00 heures, au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, à Luxembourg:

1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant:

"Methode und Apparat zur Destillation von höherschmelzenden chemischen Verbindungen" (5)

2. la description en langue allemande de l'invention en trois exemplaires:

3. 1 (une) planches de dessin, en trois exemplaires:

4. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg, le 09 octobre 1991 :

la délégation de pouvoir, datée de _____ le _____ :

6. le document d'ayant cause (autorisation);

déclare(nt) en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'(es) inventeur(s) est (sont): (6)

Eoin QUINN, Seabank, Arklow, Co. Wicklow/ Irlande

Dr. Wilhelm SCHULER, Am Elisabethenbrunnen 17, D-6380 Bad Homburg/ Allemagne

revendique(nt) pour la susdite demande de brevet la priorité d'une (des) demande(s) de (7)
/ déposée(s) en (8)

le (9) /

sous le N° (10) /

au nom de (11) /

élit(élisent) domicile pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg
321, route d'Arlon, B.P.1, L-8001 Strassen/ Luxembourg (12)

sollicite(nt) la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les annexes susmentionnées, avec ajournement de cette délivrance à _____ mois. (13)

L'un des ~~mandataires~~ / mandataires: (14)

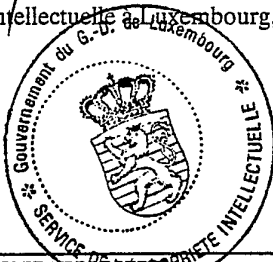
II. Procès-verbal de Dépôt

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, Service de la Propriété Intellectuelle de Luxembourg, en date du: 09 octobre 1991

à 15.00 heures

Pr. le Ministre de l'Économie et des Classes Moyennes,

Le chef du service de la propriété intellectuelle,



A 68007

EXPLICATIONS RELATIVES AU FORMULAIRE DE DÉPÔT: (1) s'il y a lieu "Demande de certificat d'addition au brevet principal" à la demande de brevet principal No. du (2) inscrire les nom, prénom, profession, adresse du demandeur, lorsque celui-ci est un particulier ou les dénomination sociale, forme juridique, adresse du siège social, lorsque le demandeur est une personne morale - (3) inscrire les nom, prénom, adresse du mandataire agréé, conseil en propriété industrielle, muni d'un pouvoir spécial, s'il y a lieu: "représenté par agissant en qualité de mandataire" - (4) date de dépôt en toutes lettres - (5) titre de l'invention - (6) inscrire les nom, prénoms, adresses des inventeurs ou l'indication "(voir) désignation séparée (suivre)", lorsque la désignation se fait ou se fera dans un document séparé, ou encore l'indication "ne pas mentionner", lorsque l'inventeur signe ou fera un document de non-mention à joindre à une désignation séparée présente ou future - (7) brevet, certificat d'addition, modèle d'utilité, brevet européen (CBE), protection internationale (PCT) - (8) Etat dans lequel le premier dépôt a été effectué ou, le cas échéant, Etats désignés dans la demande européenne ou internationale prioritaire - (9) date du premier dépôt - (10) numéro du premier dépôt complet, le cas échéant, par l'in-
le nom de l'office receveur (CBE, PCT) - (11) nom du titulaire du brevet, brevet d'addition, brevet d'utilité, brevet européen, protection internationale, etc. - (12) Domicile du demandeur ou du mandataire agréé.

REVENDICATION DE LA PRIORITE

BL-4523

de la demande de brevet / du modèle d'utilité

En

Du

Mémoire Descriptif

déposé à l'appui d'une demande de

BREVET D'INVENTION

au

Luxembourg

au nom de :

JELLALABAD LTD.

Vale Road

Arklow, Co. Wicklow

Irlande

pour : "Methode und Apparat zur Destillation von höherschmelzenden
chemischen Verbindungen"

Methode und Apparat zur Destillation von höher - schmelzenden chemischen Verbindungen

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Methode, um im industriellen Maßstab höhersiedende Substanzen schnell und vorteilhaft zu destillieren und betrifft ebenso einen dafür geeigneten Apparat.

Die Destillation ist eine der billigsten Reinigungsmethoden für chemische Verbindungen, insbesondere dann, wenn solche Verbindungen von höhersiedenden Rückständen, die oft eine Verfärbung bedingen, befreit werden sollen.

Andere Methoden der Reinigung sind beispielsweise das Umkristallisieren aus geeigneten Lösungsmitteln oder die Behandlung mit Adsorptionsmitteln wie Aktivkohle oder Silica Gel.

Die Destillation höherschmelzender Verbindungen bereitet schon im Labormaßstab, vielmehr aber im Produktionsmaßstab Schwierigkeiten, weil das Destillat im Kühler erstarren und die Apparatur verstopfen kann.

Es gibt verschiedene Methoden, um das Erstarren des Destillats im Kühler zu verhindern:

- 1) Man kann die Kühlflüssigkeit, z.B. Wasser, sehr langsam durch den Kühler fließen lassen, so daß das Kühlwasser im Kühler nur eine wenig höhere Temperatur aufweist als die Schmelztemperatur des zu destillierenden Produktes.

Der Nachteil dieser Methode ist, daß die Temperatur des Kühlwassers höher steigt oder tiefer sinkt als angestrebt, wenn die Destillationsgeschwindigkeit sich ändert. Für Destillationen im industriellen Maßstab ist diese Methode gefährlich, da sich der Kühler verstopfen und Überdruck in der Apparatur entstehen kann.

- 2) Luftkühler sind verwendet worden, die mit elektrischen Heizdrähten umwickelt sind, um das Erstarren des Destillats zu verhindern. Auch mit dieser Methode läßt sich die Temperatur des Kühlers nicht konstant halten. Sie schwankt stark mit der Destillationsgeschwindigkeit.
- 3) Die Kühlflüssigkeit, z.B. Wasser, kann recycelt werden, d.h. sie wird nach dem Passieren des Kühlers in einen großen Behälter gepumpt, der als Thermostat ausgebaut ist. Über ein Kontakt-Thermometer wird gesteuert, ob die Kühlflüssigkeit erhitzt oder gegebenenfalls gekühlt werden muß. Die Kosten für eine solche Thermostatisierung sind hoch. Außerdem kann es passieren, daß in der Praxis schneller destilliert wird als bei der Konstruktion des Apparates vorgesehen war. Der Thermostat ist dann überfordert und die Temperatur steigt höher als angestrebt.

All diese Nachteile lassen sich vermeiden, wenn im Sinne der vorliegenden Erfindung die Temperatur der Kühlflüssigkeit im Kühler durch Siedekühlung konstant gehalten wird. Die beiliegende Abbildung erklärt dieses Prinzip: Die zu destillierende Verbindung wird in die Destillationsblase⁽¹⁾ gegeben, die mit aufgeschweißten Halbschalen zur Beheizung mit Dampf versehen ist. Der Krümmer ist mit einer Spritzschutzvorrichtung⁽²⁾ versehen. Ein Teil des Krümmers trägt einen Dampfmantel⁽³⁾, um ein Erstarren des Destillats in diesem Teil der Apparatur zu verhindern. Die Destillationsdämpfe gelangen dann in einen Röhrenkühler⁽⁴⁾. Die Kühlflüssigkeit in diesem Kühler hat einen Siedepunkt, der wenige Grade über dem Schmelzpunkt der zu destillierenden Substanz liegt. Der Siedepunkt der Kühlflüssigkeit soll vorzugsweise 1 bis 30° C über dem jeweiligen Schmelzpunkt der zu destillierenden Substanz liegen. Im allgemeinen siedet die Kühlflüssigkeit während der Destillation. Als Kühlflüssigkeit kommen Wasser oder

entsprechende organische flüssige Mittel in Frage, die zwischen 35° C und 220° C siedend. Der Kühler, der die Kühlflüssigkeit enthält, ist beheizbar. Im allgemeinen wird die Kühlflüssigkeit bereits vor Beginn der Destillation in dem Kühler zum Sieden erhitzt. Als Kühlflüssigkeit hat sich beispielsweise insbesondere Methanol (bp: 65° C), Wasser oder Glykolmonoethylether (bp: 135° C) bewährt. Bevor die Destillation beginnt, wird die Kühlflüssigkeit im Kühler zum Sieden gebracht, in dem Dampf durch den Dampfmantel⁽⁵⁾ des Kühlers geleitet wird. Die verdampfte Kühlflüssigkeit wird in dem mit Wasser gespeisten Rückflußkühler⁽⁶⁾ kondensiert und fließt in das Vorratsgefäß⁽⁷⁾ und gelangt über dieses wieder in den Röhrenkühler⁽⁴⁾. Die Temperatur der Kühlflüssigkeit in diesem Kühler ist durch die Siedekühlung immer konstant identisch mit der Siedetemperatur der verwendeten Kühlflüssigkeit. Wird schnell destilliert, dann verdampft viel Kühlflüssigkeit im Röhrenkühler⁽⁴⁾.

Mit Beginn der Destillation wird die Dampfzufuhr zu dem Dampfmantel⁽⁵⁾ abgeschaltet. - Die Vorlage⁽⁸⁾ kann mit Hilfe der aufgeschweißten Halbschalen beheizt werden, um ein Erstarren des Destillates zu verhindern.

Sicherheitshalber ist eine Kühlfalle⁽⁹⁾ eingebaut, die mit der Vakuumpumpe⁽¹⁰⁾ verbunden ist.

Beispiel 1:

300 kg, rohes, leicht braun gefärbtes, 1-Diethylcarbamoyl - 4-methylpiperazin wurden in der in der Abbildung dargestellten Destillationsanlage destilliert. Als Kühlflüssigkeit wurde der Röhrenkühler⁽⁴⁾ zu dreiviertel mit Methanol gefüllt. Von Beginn der Destillation wurde das Methanol zum Sieden gebracht, in dem Dampf durch den Dampfmantel⁽⁵⁾ des Kühlers geleitet wurde. Die Apparatur wurde auf 1 mbar evakuiert und die Destillationsblase mit Dampf beheizt. Bei Beginn der Destillation wurde der Dampf des Dampfmantels⁽⁵⁾ abgestellt.

Als Destillat wurde in fast quantitativer Ausbeute sasserklares 1-Diethylcarbamoyl - 4-methylpiperazin erhalten, das nach dem Erstarren bei 47 - 49° C schmolz.

Beispiel 2:

350 kg rohe p-Hydroxybenzoesäure methylster wurden, wie in Beispiel 1 beschrieben, destilliert. Aber als Kühlflüssigkeit wurde der Röhrenkühler⁽⁴⁾ zu dreiviertel mit Glycolmonoethylether gefüllt. Die Destillation erfolgte bei einem Vakuum von 30 mbar. Es wurde in fast quantitativer Ausbeute p-Hydroxybenzoesäuremethylester erhalten, der nach dem Erkalten bei 131° C schmolz.

PATENTANSPRÜCHE

- 1) Verfahren zur Destillation von chemischen Verbindungen, die bei über 25° C schmelzen, dadurch gekennzeichnet, daß der zur Kondensation und Kühlung verwendete Kühler der Destillationsanlage mit einer Kühlflüssigkeit gefüllt wird, die einige Grade höher siedet als der Schmelzpunkt der zu destillierenden Substanz, und die verdampfende Kühlflüssigkeit an einem Rückflußkühler kondensiert wird.
- 2) Verfahren nach Anspruch 1 dadurch gekennzeichnet, daß als Kühlflüssigkeit Wasser oder organische Lösungsmittel, die zwischen 35° und 220° C siedend, verwendet wurden.
- 3) Verfahren nach Anspruch 1-3 dadurch gekennzeichnet, daß der Kühler der Destillationsanlage beheizbar ist.
- 4) Verfahren nach Anspruch 1-4 dadurch gekennzeichnet, daß die Destillationsvorlage heizbar gebaut ist.

Abbildung

