

(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  
4. Februar 2016 (04.02.2016)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2016/016375 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation:  
C07C 51/43 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2015/067519

(22) Internationales Anmeldedatum:  
30. Juli 2015 (30.07.2015)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
14179166.5 30. Juli 2014 (30.07.2014) EP

(71) Anmelder: BASF SE [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen  
(DE).

(72) Erfinder: MENKE, Olaf; Lerchenweg 3, 67317  
Altleiningen (DE). RUSLIM, Franky; Sonnige Au 3,  
68163 Mannheim (DE). STEIDEL, Günter; Erlenweg 6,  
67454 Haßloch (DE).

(74) Anwalt: BAIER, Martin; Friedrichsplatz 9, 68165  
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, BN, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP,  
KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME,  
MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ,  
OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA,  
SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST,  
SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG,  
KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, 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,  
RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,  
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz  
3)

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING FREE-FLOWING AND STORAGE-STABLE DICARBOXYLIC ACID CRYSTALS

(54) Bezeichnung : VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON RIESELFÄHIGEN UND LAGERSTABILEN  
DICARBONSÄURE-KRISTALLEN

(57) Abstract: The invention relates to a method for producing free-flowing and storage-stable dicarboxylic acid crystals (DK), comprising the following steps: a) crystallizing a dicarboxylic acid from a solution (L), which contains a solvent (LM) and dissolved dicarboxylic acid, in a crystallizer (I), a suspension (S) thus being obtained, said suspension containing suspended dicarboxylic acid crystals (sDK) and a mother liquor (M), which contains the solvent (LM) and dissolved dicarboxylic acid, b) transferring the suspension (S) from step a) into a drying device (II; III) by means of a centrifugal pump, c) removing the suspended dicarboxylic acid crystals (sDK) from the mother liquor (M) in the drying device (II; III), dried dicarboxylic acid crystals (tDK) thus being obtained, d) transferring the dried dicarboxylic acid crystals (tDK) from step c) into a storage device (IV) by means of a dense-phase conveying system, the free-flowing and storage-stable dicarboxylic acid crystals (DK) thus being obtained.

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Herstellung von rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristallen (DK), umfassend die Schritte a) Kristallisation einer Dicarbonsäure aus einer Lösung (L), die ein Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält, in einem Kristallisator (I) unter Erhalt einer Suspension (S), enthaltend suspendierte Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und eine Mutterlauge (M), die das Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält, b) Überführen der Suspension (S) aus Verfahrensschritt a) durch eine Kreiselpumpe in eine Trocknungsvorrichtung (II; III), c) Abtrennen der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) in der Trocknungsvorrichtung (II; III) unter Erhalt getrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) d) Überführen der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) aus Verfahrensschritt c) durch ein Dichtstromfördersystem in eine Lagervorrichtung (IV) unter Erhalt der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK).



WO 2016/016375 A1

VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON RIESELFÄHIGEN UND LAGERSTABILEN  
DICARBONSÄURE-KRISTALLEN

Beschreibung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristallen (DK).

10

Dicarbonsäuren sind wichtige Zwischenprodukte für die Herstellung von Polymeren, insbesondere von Polyamiden und Polyurethanen. Darüber hinaus finden Dicarbonsäuren Einsatz als Lebensmittelzusatzstoffe. Diester von Dicarbonsäuren werden außerdem als Weichmacher verwendet.

15

Dicarbonsäuren können beispielsweise durch die Oxidation von zyklischen Alkoholen, zyklischen Ketonen oder Gemischen aus zyklischen Alkoholen und zyklischen Ketonen mit Oxidationsmitteln wie konzentrierter Salpetersäure oder Luft hergestellt werden. Verfahren hierzu sind beispielweise in der DE 1 238 000 beschrieben.

20

Die, gemessen an der Jahresproduktion, bedeutsamste Dicarbonsäure ist Adipinsäure. Diese wird großtechnisch in zwei Reaktionsschritten ausgehend von Cyclohexan gewonnen. In einem ersten Schritt wird Cyclohexan mit Luft zu einem Cyclohexanol/Cyclohexanon-Gemisch (Anolon-Gemisch) oxidiert. Nach Abtrennung von nicht umgesetztem Cyclohexan wird das Anolon-Gemisch in einem zweiten Schritt mit konzentrierter Salpetersäure oxidiert. Ebenso ist es möglich, das Anolon-Gemisch mit Luft zu oxidieren.

25

In neuerer Zeit hat die Herstellung von Adipinsäure aus Adipinsäure-Vorstufen Bedeutung erlangt, die ausgehend von nachwachsenden Rohstoffen wie Zucker gewonnen werden können. So kann Adipinsäure beispielsweise durch Hydrierung von Muconsäure (2,4-Hexadiendicarbonsäure) gewonnen werden oder durch Desoxygenierung von Glucarsäure.

30

Die Reinigung der Dicarbonsäuren erfolgt im Allgemeinen durch Kristallisation der Dicarbonsäuren aus Lösung in einem Kristallisator. Die Dicarbonsäure-Kristalle werden nachfolgend von dem Kristallisator zur Trocknung in eine Trocknungsvorrichtung transportiert. Von der Trocknungsvorrichtung müssen die Dicarbonsäure-Kristalle nachfolgend in eine Lagervorrichtung transportiert werden.

35

Die im Stand der Technik beschriebenen Dicarbonsäure-Kristalle weisen jedoch oft die Eigenschaft auf, bei längerer Lagerung im Haufwerk zu größeren Agglomeraten zu verbacken. Die Auflockerung derart verbackener Dicarbonsäure-Kristalle ist nur unter

40

## 2

erheblichem mechanischem Aufwand möglich. Größere Transport- und Lagergebäude, wie beispielsweise Big Bags oder Silos, lassen sich daher häufig nur unter erheblichem mechanischen Aufwand entleeren. Dies führt zu einem unerwünschten zusätzlichen Zeit- und Kostenaufwand bei der Weiterverarbeitung von Dicarbonsäure-Kristallen.

5

Es wird vermutet, dass die hydrophilen Carbonsäuregruppen auf den Oberflächen der Dicarbonsäure-Kristalle durch die Ausbildung von Wasserstoffbrückenbindungen zu den Carbonsäuregruppen anderer Dicarbonsäure-Kristalle für das Verbacken verantwortlich sind.

10

Ein weiteres Problem stellt der Transport der Dicarbonsäure-Kristalle vom Kristallisator zur Trocknungsvorrichtung und von der Trocknungsvorrichtung zur Lagervorrichtung dar. Durch die hierbei auftretende mechanische Belastung der Dicarbonsäure-Kristalle kommt es zu einer Zerkleinerung der im Kristallisator erhaltenen Dicarbonsäure-Kristalle, d.h. es bilden sich Dicarbonsäure-Kristalle mit einer kleineren Teilchengröße.

15

Dieses Phänomen wird auch als Bildung von Feinanteil bezeichnet. Die damit einhergehende Verbreiterung der Kristallgrößenverteilung führt durch Staubbildung zu Problemen bei der weiteren Verarbeitung. Es kann hierdurch zu Produktverlusten kommen. Außerdem sind unter Umständen aufwändige Maßnahmen zur Gewährleistung der Arbeitssicherheit notwendig. Darüber hinaus wird die Bildung von Feinanteil häufig empirisch mit einer Verschlechterung des Rieselverhaltens (der Rieselfähigkeit) der Dicarbonsäure-Kristalle in Verbindung gebracht. Darüber hinaus wird vermutet, dass die Bildung des Feinanteils für das Verbacken der Dicarbonsäure-Kristalle bei der Lagerung mitverantwortlich ist bzw. dieses begünstigt.

20

25

Um eine Verschlechterung der Rieselfähigkeit und ein Verbacken der Dicarbonsäure-Kristalle bei dem Transport und der nachfolgenden Lagerung zu unterbinden oder zumindest zu reduzieren, sind im Stand der Technik verschiedene Verfahren beschrieben.

30

Eine Methode, um das Verbacken der Dicarbonsäure-Kristallen zu unterbinden, ist die Belegung der Kristalle mit hydrophobierenden Mitteln.

35

So beschreibt beispielsweise die DE 1 618 796 mehrere Verfahren, um die Oberfläche von Adipinsäure-Kristallen durch das Aufbringen von Monocarbonsäuren zu hydrophobieren und die Ausbildung von Wasserstoffbrückenbindungen dadurch zu verhindern. Nachteilig an diesem Verfahren ist, dass der Adipinsäure zwischen 20 und 100 ppm an Monocarbonsäuren zugesetzt werden müssen, die in den Adipinsäure-Kristallen verbleiben und diese damit für Anwendungen mit hohen Reinheitsanforderungen ungeeignet machen. Außerdem ist bei den in der DE 1 618 796 beschriebenen Verfahren ein zusätzlicher Verfahrensschritt bei der

40

## 3

Herstellung der Adipinsäure-Kristalle notwendig, was diese Verfahren zeitaufwändig und daher kostenintensiv macht. Die Bildung von Feinanteil wird durch dieses Verfahren nicht verhindert.

5 Die US 5 296 639 beschreibt ein Verfahren zur Reinigung von Adipinsäure durch Kristallisation, bei dem die Kristallmorphologie derart modifiziert wird, dass sich die Aufnahme von Verunreinigungen während der Kristallisation verringert. Zu diesem Zweck werden Additive, wie beispielsweise Capronsäure oder ausgewählte Tenside, wie beispielsweise Natriumdodecylsulfat, Natriumdodecylsulfonat oder  
10 Natriumdodecylbenzolsulfonat, zugegeben. Nachteilig wirkt sich bei diesem Verfahren aus, dass die Additive typischerweise in Konzentrationen von mehr als 100 ppm bis zu 3% zugesetzt werden müssen, um den gewünschten Effekt zu erzielen. Hierdurch werden die Adipinsäure-Kristalle in der Regel unzulässig kontaminiert. Zusätzlich entsteht beim Einsatz von Tensiden noch der Nachteil, dass sie im Falle einer  
15 Aufpegelung durch interne Rückführung des Lösungsmittels (in der Regel Wasser) in Anlagen zur Schaumbildung führen, so dass eine Anwendung in konkreten technischen Prozessen in der Regel erschwert wird oder sogar überhaupt nicht möglich ist. Auch mit dem in der US 5 296 639 beschriebenen Verfahren lässt sich die Bildung von Feinanteil während des Transports der Kristalle nicht verhindern.

20

Aus der EP 0 968 167 ist bekannt, Lösungen von Dicarbonsäuren unter Zugabe von mindestens einem anionischen Polyelektrolyten mit einer Molmasse von wenigstens 2000 g/mol als Kristallisationshilfsmittel einer Kristallisation zu unterziehen. Die dabei erhaltenen Dicarbonsäure-Kristalle sind bei größeren mittleren Durchmessern deutlich  
25 kompakter.

Auch bei dem in der EP 0 968 167 beschriebenen Verfahren ist der Zusatz von Additiven in Form eines anionischen Polyelektrolyten als nachteilig anzusehen, da die Additive an den Grenzflächen der Dicarbonsäure-Kristalle adsorbiert werden und damit  
30 unabwendbar in den Dicarbonsäure-Kristallen als Verunreinigung auftreten. Auch mit dem in der EP 0 968 167 beschriebenen Verfahren lässt sich die Bildung von Feinanteil während des Transports der Kristalle nicht verhindern.

Keine der drei Schriften DE 1 618 796, US 5 296 639 und EP 0 968 167 beschreibt  
35 Verfahren, um die Bildung des unerwünschten Feinanteils zu verhindern oder zumindest zu verringern. Daher bildet sich auch bei den gemäß diesen Verfahren hergestellten Dicarbonsäure-Kristallen häufig Feinanteil beim Transport in die Lagervorrichtung, was, wie oben beschrieben, einerseits zu einem Verlust der Rieselfähigkeit und andererseits zur Staubbildung und damit einhergehend  
40 Produktverlust führen kann. Darüber hinaus wird vermutet, dass die Bildung des Feinanteils für das Verbacken der Dicarbonsäure-Kristalle bei der Lagerung mitverantwortlich ist bzw. dieses begünstigt.

Die EP 2 551 256 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Bernsteinsäurekristallen. Durch den Einsatz eines speziellen Kristallisators werden dabei enge Partikelgrößenverteilungen erzielt. Die erhaltenen Bernsteinsäurekristalle weisen allerdings trotzdem einen relativ hohen Feinanteil auf.

Der vorliegenden Erfindung liegt somit die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren bereitzustellen, das die vorstehend beschriebenen Nachteile des Standes der Technik nicht oder in vermindertem Maße aufweist. Es soll zudem möglichst einfach und kostengünstig durchführbar sein. Die erfindungsgemäß hergestellten Dicarbonsäure-Kristalle sollen auch nach längerer Lagerung nicht verbacken und ihre Rieselfähigkeit behalten.

Gelöst wird diese Aufgabe durch ein Verfahren zur Herstellung von rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristallen (DK), umfassend die Schritte

- a) Kristallisation einer Dicarbonsäure aus einer Lösung (L), die ein Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält, in einem Kristallisor (I) unter Erhalt einer Suspension (S), enthaltend suspendierte Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und eine Mutterlauge (M), die das Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält,
- b) Überführen der Suspension (S) aus Verfahrensschritt a) durch eine Kreiselpumpe in eine Trocknungsvorrichtung (II; III),
- c) Abtrennen der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) in der Trocknungsvorrichtung (II; III) unter Erhalt getrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (tDK),
- d) Überführen der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) aus Verfahrensschritt c) durch ein Dichtstromfördersystem in eine Lagervorrichtung (IV) unter Erhalt der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK).

Es wurde überraschend festgestellt, dass sich die mittlere Kristallgröße der mit dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) nur geringfügig von der mittleren Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK), die in der in Verfahrensschritt a) erhaltenen Suspension (S) enthalten sind, unterscheidet. Unter „geringfügig“ wird vorliegend verstanden, dass die mittlere Kristallgröße der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) um höchstens 40 %, bevorzugt um

## 5

höchstens 25 % und insbesondere bevorzugt um höchstens 15 % kleiner ist als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK).

5 Dass sich die mittlere Kristallgröße der erfindungsgemäß hergestellten rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) nur geringfügig von der mittleren Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) unterscheidet, zeigt dass mit dem erfindungsgemäßen Verfahren die mechanische Belastung und damit einhergehend der Abrieb geringer ist als mit im Stand der Technik beschriebenen Verfahren. Somit bildet sich in dem erfindungsgemäßen Verfahren auch weniger  
10 Feinanteil (F) als in den Verfahren wie sie im Stand der Technik beschrieben sind.

Unter „Feinanteil (F)“ werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung Dicarbonsäure-Kristalle mit einer Kristallgröße von  $< 100 \mu\text{m}$  verstanden.

15 Die mechanische Belastung, die auf die Dicarbonsäure-Kristalle wirkt, kann durch das erfindungsgemäße Verfahren überraschenderweise deutlich reduziert werden gegenüber den Verfahren wie sie im Stand der Technik beschrieben sind, wodurch im erfindungsgemäßen Verfahren deutlich weniger Feinanteil (F) erhalten wird.

20 Mit der erfindungsgemäß eingesetzten Kreiselpumpe wird die Prallbeanspruchung, die auf die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) wirkt, überraschenderweise so deutlich reduziert, dass der Abrieb und damit auch die Bildung von Feinanteil (F) deutlich verringert wird.

25 Durch das erfindungsgemäß verwendete Dichtstromfördersystem reduzieren sich überraschenderweise außerdem die Scher- und Reibungskräfte, die auf die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) während der Förderung wirken, so stark, dass die Bildung von Feinanteil (F) ebenfalls deutlich reduziert wird.

30 Da sich im erfindungsgemäßen Verfahren weniger Feinanteil (F) bildet, bleibt außerdem die Form der in Verfahrensschritt a) erhaltenen suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) im erfindungsgemäßen Verfahren im Wesentlichen erhalten.

35 Da die erfindungsgemäß hergestellten rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) deutlich weniger Feinanteil (F) enthalten, besitzen die rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) eine gute Rieselfähigkeit und neigen nicht zum Verbacken. Zudem besitzen die erfindungsgemäß hergestellten rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) eine gute Lagerstabilität. Unter  
40 „Lagerstabilität“ wird vorliegend verstanden, dass die positiven Eigenschaften der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK), insbesondere deren

## 6

Rieselfähigkeit, auch bei längerer Lagerung, beispielsweise über einen Zeitraum im Bereich von 1 Tag bis 4 Wochen, erhalten bleiben.

Die rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) verbacken also auch bei längerer Lagerung nicht oder in einem geringeren Ausmaß als Dicarbonsäure-Kristalle, die mit im Stand der Technik beschriebenen Verfahren hergestellt werden. Eine mechanische Auflockerung der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) nach längerer Lagerung ist also nicht nötig, was das erfindungsgemäße Verfahren weniger zeitintensiv und daher kostengünstiger macht als die im Stand der Technik beschriebenen Verfahren.

Nachfolgend werden die einzelnen Verfahrensschritte des erfindungsgemäßen Verfahrens näher erläutert.

15 Verfahrensschritt a)

In Verfahrensschritt a) wird eine Dicarbonsäure aus einer Lösung (L), die ein Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält, in einem Kristallisator (I) kristallisiert unter Erhalt einer Suspension (S), enthaltend suspendierte Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und eine Mutterlauge (M), die das Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält.

Unter „eine Dicarbonsäure“ wird erfindungsgemäß sowohl genau eine Dicarbonsäure als auch Mischungen aus zwei oder mehr Dicarbonsäuren verstanden. Bevorzugt ist genau eine Dicarbonsäure.

Unter „ein Lösungsmittel (LM)“ wird erfindungsgemäß sowohl genau ein Lösungsmittel (LM) als auch Mischungen aus zwei oder mehreren Lösungsmitteln (LM) verstanden.

Die Lösung (L) kann nach allen dem Fachmann bekannten Methoden bereitgestellt werden. Üblicherweise wird zunächst die Dicarbonsäure nach einem dem Fachmann bekannten Verfahren hergestellt. Im Allgemeinen wird die Dicarbonsäure im Anschluss an ihre Herstellung einer Rohkristallisation unterzogen. Verfahren zur Rohkristallisation von Dicarbonsäuren sind dem Fachmann als solche bekannt.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird die Dicarbonsäure im Anschluss an die Rohkristallisation zunächst einer Reinkristallisation unterzogen und dann Verfahrensschritt a) durchgeführt. Verfahren zur Reinkristallisation sind dem Fachmann bekannt. Verfahrensschritt a) wird daher auch als Reinstkristallisation bezeichnet. Üblicherweise ist Verfahrensschritt a) die letzte Kristallisation der Dicarbonsäure, bevor die Dicarbonsäure in die Lagervorrichtung (IV) überführt wird.

In einer Ausführungsform werden die nach der Rohkristallisation oder gegebenenfalls nach der Reinkristallisation erhaltenen Dicarbonsäure-Kristalle zur Herstellung der Lösung (L) in dem Lösungsmittel (LM) vollständig gelöst. Die Lösung (L) enthält dann  
5 keine suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK). In einer weiteren Ausführungsform werden die nach der Rohkristallisation oder gegebenenfalls nach der Reinkristallisation erhaltenen Dicarbonsäure-Kristalle zur Herstellung der Lösung (L) unvollständig in dem Lösungsmittel (LM) gelöst. Die Lösung (L) enthält dann Dicarbonsäure-Kristalle. Bei den Dicarbonsäure-Kristallen kann es sich beispielsweise um die suspendierten  
10 Dicarbonsäure-Kristalle (sDK), Feinanteil (F) oder um Impfkristalle handeln.

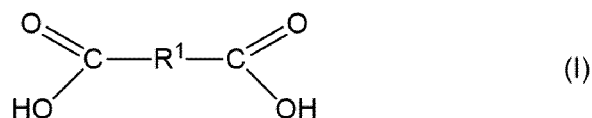
Darüber hinaus ist es möglich, zumindest Teile der Lösung (L) bereit zu stellen, indem ein Teil der in Verfahrensschritt a) erhaltenen Suspension (S) direkt oder indirekt in den Kristallisator (I) rückgeführt wird. Es ist außerdem möglich, dass die Lösung (L)  
15 bereitgestellt wird indem die Mutterlauge (M), die in den nach Verfahrensschritt a) folgenden Verfahrensschritten erhalten wird, direkt oder indirekt in Verfahrensschritt a) rückgeführt wird. In diesen Ausführungsformen kann die Lösung (L) ebenfalls suspendierte Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) enthalten.

20 Die Bezeichnung „Kristalle“ umfasst im Rahmen der vorliegenden Erfindung sämtliche kristallinen Formen. „Kristalle“ umfasst also nicht nur Einkristalle, sondern auch beispielsweise Kristallagglomerate, Kristallite und Kristallpulver.

Die Lösung (L) kann suspendierte Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) enthalten. Die  
25 Lösung (L) enthält dann einen geringeren Anteil an suspendierten Dicarbonsäure-Kristallen (sDK) als die Suspension (S).

In einer erfindungsgemäßen Ausführungsform enthält die Lösung (L) in  
30 Verfahrensschritt a) im Bereich von 20 bis 60 Gew.-% gelöster Dicarbonsäure, bevorzugt im Bereich von 30 bis 50 Gew.-% gelöster Dicarbonsäure und insbesondere bevorzugt im Bereich von 35 bis 45 Gew. % gelöster Dicarbonsäure, bezogen auf das Gesamtgewicht der Lösung (L).

Die in der Lösung (L) enthaltene gelöste Dicarbonsäure kann alle dem Fachmann  
35 bekannten Dicarbonsäuren enthalten. Bevorzugt enthält sie eine Dicarbonsäure der allgemeinen Formel (I)



worin

- 5 R<sup>1</sup> ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus einer Bindung, einem unsubstituierten oder zumindest monosubstituierten C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkandiyl und einem unsubstituierten oder zumindest monosubstituierten C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen, bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus einer Bindung, einem unsubstituierten oder zumindest monosubstituierten C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-Alkandiyl und einem unsubstituierten oder zumindest monosubstituierten C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, wobei
- 10 die Substituenten beispielsweise ausgewählt sind aus F, Cl, Br, OH, (=O) und C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyl.

Ein C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkandiyl ist ein Kohlenwasserstoff mit zwei freien Valenzen und von 1 bis 12 Kohlenstoffatomen. Anders ausgedrückt ist ein C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkandiyl ein Bi-Radikal mit 15 bis 12 Kohlenstoffatomen. Die Bezeichnung „C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkandiyl“ umfasst sowohl lineare als auch zyklische sowie gesättigte und ungesättigte Alkandiyle mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen. Entsprechende Ausführungen gelten für ein C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-Alkandiyl.

20 C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen bezeichnet einen aromatischen Kohlenwasserstoff mit zwei freien Valenzen und von 6 bis 14 Kohlenstoffatomen. Anders ausgedrückt bezeichnet „C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen“ ein aromatisches Bi-Radikal mit 6 bis 14 Kohlenstoffatomen. Entsprechende Ausführungen gelten für das C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen.

25 Besonders bevorzugt ist die Dicarbonsäure, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Terephthalsäure, Isophthalsäure, Oxalsäure, Malonsäure, Bernsteinsäure, Glutarsäure, Adipinsäure, Pimelinsäure, Korksäure, Sebacinsäure, Decandicarbonsäure und Dodecandicarbonsäure. Besonders bevorzugt ist die Dicarbonsäure, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Terephthalsäure, Adipinsäure und Bernsteinsäure und insbesondere bevorzugt als Dicarbonsäure ist

30 Adipinsäure.

Als Lösungsmittel (LM) eignen sich prinzipiell alle dem Fachmann bekannten Lösungsmittel (LM). Bevorzugt enthält das Lösungsmittel (LM) mindestens ein Lösungsmittel ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Methanol, Ethanol und

35 Wasser.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem das Lösungsmittel (LM) in Verfahrensschritt a) mindestens ein Lösungsmittel ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Methanol, Ethanol und Wasser enthält.

40 Vorzugsweise enthält das Lösungsmittel (LM) mindestens 60 Gew.-% Wasser, bevorzugt mindestens 80 Gew.-% Wasser und insbesondere bevorzugt mindestens

## 9

95 Gew.-% Wasser, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht des Lösungsmittels (LM). Am meisten bevorzugt besteht das Lösungsmittel (LM) aus Wasser.

5 Die Kristallisation der Dicarbonsäure aus der Lösung (L) wird erfindungsgemäß in einem Kristallisator (I) durchgeführt. Als Kristallisator (I) eignen sich prinzipiell alle dem Fachmann bekannten Kristallisatoren.

10 Bevorzugt wird als Kristallisator (I) ein gerührter Behälter eingesetzt, der einen vertikalen, zylindrischen Tank mit Seitenwänden und einem Boden, Mittel zum Zuführen der Lösung (L) und Abführen der Suspension (S), ein im zylindrischen Tank coaxial angeordnetes Leitrohr und einen coaxial am Tankboden angeordneten Blattrührer mit sich drehender coaxialer Welle und Rührblättern aufweist, der die Lösung (L) in radialer Richtung fördert, sodass sich eine Strömung der Lösung (L) in Art eines Schlaufenreaktors einstellt, wobei die Umfangsgeschwindigkeit des Blattrührers 0,5 bis 6 m/s beträgt und der Leistungseintrag in die Lösung (L) durch den Blattrührer 0,01 bis 5 kW/m<sup>3</sup> beträgt.

20 Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem als Kristallisator (I) in Verfahrensschritt a) ein gerührter Behälter eingesetzt wird, der einen vertikalen, zylindrischen Tank mit Seitenwänden und einem Boden, Mittel zum Zuführen der Lösung (L) und Abführen der Suspension (S), ein im zylindrischen Tank coaxial angeordnetes Leitrohr und einen coaxial am Tankboden angeordneten Blattrührer mit sich drehender coaxialer Welle und Rührblättern aufweist, der die Lösung (L) in radialer Richtung fördert, so dass sich eine Strömung der Lösung (L) in Art eines Schlaufenreaktors einstellt, wobei die Umfangsgeschwindigkeit des Blattrührers 0,5 bis 6 m/s beträgt, und der Leistungseintrag in die Lösung (L) durch den Blattrührer 0,01 bis 5 kW/m<sup>3</sup> beträgt.

30 Der zylindrische Tank umfasst üblicherweise einen Deckel. Der zylindrische Tank weist einen Innendurchmesser (D) und eine Innenhöhe (H) auf. Die Innenhöhe (H) wird von der tiefsten Stelle am Boden des zylindrischen Tanks bis zu der höchsten Stelle am Deckel des zylindrischen Tanks gemessen.

35 Das Verhältnis der Innenhöhe (H) zum Innendurchmesser (D) des zylindrischen Tanks, H/D, liegt bevorzugt im Bereich von 1 bis 6, besonders bevorzugt im Bereich von 2 bis 4.

40 Das Leitrohr wird im zylindrischen Tank so angeordnet, dass sowohl zwischen dem Deckel des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr als auch zwischen dem Boden des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr ein freier Raum erhalten bleibt.

## 10

Zwischen den Seitenwänden des zylindrischen Tanks und der Außenwand des im zylindrischen Tank coaxial angeordneten Leitrohrs bildet sich ein Ringraum. Die Lösung (L) kann im Kristallisator (I) sowohl durch diesen Ringraum als auch durch das Leitrohr strömen. Erfindungsgemäß strömt sie in Art eines Schlaufenreaktors in dem  
5 Kristallisator (I). Dies bedeutet, dass die Lösung (L) sowohl durch das Leitrohr als auch durch den Ringraum axial strömt. Zwischen dem Boden des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr, sowie zwischen dem Deckel des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr strömt die Lösung (L) radial. Üblicherweise befindet sich zwischen der radial oberhalb des Leitrohrs strömenden Lösung (L) und dem Deckel des zylindrischen Tanks ein  
10 freies Gasvolumen. Dann strömt die Lösung (L) zwischen dem Leitrohr und dem freien Gasvolumen. Im Folgenden umfasst die Bezeichnung „zwischen dem Deckel des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr“ daher auch die Ausführungsform, in der sich oberhalb der strömenden Lösung noch ein freies Gasvolumen befindet. Die Strömungsrichtungen durch das Leitrohr und den Ringraum sind einander  
15 entgegengesetzt, ebenso sind die Strömungsrichtungen zwischen dem Boden des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr, sowie zwischen dem Deckel des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr einander entgegengesetzt. Axial bedeutet vorliegend eine Strömung entlang des Leitrohrs, radial bedeutet eine Strömung senkrecht zum Leitrohr. Bezogen auf die Querschnittsansicht des zylindrischen Tanks in Form eines vertikalen  
20 Schnitts durch den Tank, ergibt sich so eine schlaufenförmige Strömung der Lösung (L). Die Lösung (L) strömt somit in Art eines Schlaufenreaktors.

Das Leitrohr weist einen Durchmesser ( $D_L$ ) auf. Das Verhältnis des Durchmessers ( $D_L$ ) des Leitrohrs zum Innendurchmesser ( $D$ ) des zylindrischen Tanks,  $D_L/D$ , liegt  
25 bevorzugt im Bereich von 0,2 bis 0,8, besonders bevorzugt im Bereich von 0,3 bis 0,7.

Das Leitrohr kann außerdem Strombrecher umfassen. Strombrecher als solche sind dem Fachmann bekannt. Erfindungsgemäß können alle dem Fachmann bekannten Strombrecher eingesetzt werden.  
30

Der am Tankboden angeordnete Blattrührer kann zwischen dem Boden des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr angeordnet sein. Ebenso ist es möglich, dass er innerhalb des Leitrohrs am Boden des zylindrischen Tanks angeordnet ist. Bevorzugt ist der Blattrührer zwischen dem Boden des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr  
35 angeordnet.

Durch die Anordnung des Blattrührers am Tankboden ergibt sich die oben beschriebene radiale Strömung der Lösung (L) zwischen dem Boden des zylindrischen Tanks und dem Leitrohr.  
40

Als Blattrührer eignen sich prinzipiell alle dem Fachmann bekannten Blattrührer, mit sich drehender coaxialer Welle und Rührerblättern. Geeignete Blattrührer sind

## 11

beispielsweise in der EP 1 208 905, sowie der WO 2004/058377 beschrieben. Bevorzugt ist der Blattrührer ausgewählt aus Radialrührern, Schrägblattrührern, Turbinenrührern, Propellerrührern, Ankerrührern, Wendelrührern und schneckenförmigen Rührern.

5

Der Leistungseintrag des Blattrührers in die Lösung (L) liegt erfindungsgemäß im Bereich von 0,01 bis 5 kW/m<sup>3</sup>, bevorzugt im Bereich von 0,05 bis 2 kW/m<sup>3</sup> und insbesondere bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 0,5 kW/m<sup>3</sup>. Der Leistungseintrag ist definiert als das Verhältnis zwischen der Leistung (P) des Blattrührers und dem Füllvolumen (V) des Behälters. Unter „Füllvolumen (V)“ wird das Volumen der Lösung (L) und der Suspension (S) im Behälter verstanden.

10

Unter der Umfangsgeschwindigkeit des Blattrührers wird die Geschwindigkeit des äußeren Randes des Blattrührers verstanden. Die Umfangsgeschwindigkeit liegt erfindungsgemäß im Bereich von 0,5 bis 6 m/s, bevorzugt im Bereich von 1 bis 5 m/s insbesondere bevorzugt im Bereich von 1,2 bis 4 m/s und am meisten bevorzugt im Bereich von 1,5 bis 3,5 m/s.

15

Die Kristallisation der Dicarbonsäure aus der Lösung (L) im Kristallisator (I) erfolgt üblicherweise aus einer übersättigten Lösung (L). Unter einer übersättigten Lösung (L) wird die Lösung (L) verstanden, bei der die Konzentration der in der Lösung (L) enthaltenen gelösten Dicarbonsäure größer ist als die Löslichkeit der Dicarbonsäure in dem in der Lösung (L) enthaltenen Lösungsmittel (LM).

20

Die Löslichkeit der Dicarbonsäure in dem in der Lösung (L) enthaltenen Lösungsmittel (LM) ist abhängig von der Temperatur der Lösung (L). Sie sinkt mit sinkender Temperatur. Daher kann die Lösung (L) im Kristallisator (I) übersättigt werden, indem die Lösung (L) abgekühlt wird.

25

Darüber hinaus ist es möglich, einen Teil des Lösungsmittels (LM) aus der Lösung (L) zu verdampfen oder zu verdunsten, beispielsweise durch eine Erhöhung der Temperatur und/oder durch das Anlegen eines Unterdrucks. Dadurch erhöht sich die Konzentration der Dicarbonsäure in der Lösung (L) und kann so die Löslichkeit der Dicarbonsäure in dem in der Lösung (L) enthaltenen Lösungsmittel (LM) überschreiten, wodurch die Lösung (L) übersättigt wird.

30

35

In einer bevorzugten Ausführungsform wird die Lösung (L) im Kristallisator (I) durch Verdampfungskühlung übersättigt. Die Verdampfungskühlung ist dem Fachmann als solche bekannt, sie kann als Kombination aus den beiden zuvor beschriebenen Ausführungsformen zum Übersättigen der Lösung (L) angesehen werden. Durch das Anlegen eines Unterdrucks verdampft das in der Lösung (L) enthaltene Lösungsmittel (LM), gleichzeitig kühlt die Lösung (L) ab und übersättigt.

40

In einer bevorzugten Ausführungsform wird die Lösung (L) im Kristallisator (I) abgekühlt. Dazu wird die Lösung (L) dem Kristallisator (I) mit einer Temperatur im Bereich von 50 bis < 100 °C, bevorzugt im Bereich von 60 bis 90 °C und insbesondere im Bereich von 75 bis 85 °C zugeführt.

Im Kristallisator (I) wird die Lösung (L) dann abgekühlt. Dadurch kristallisiert die Dicarbonsäure aus der Lösung (L) unter Erhalt der Suspension (S). Die Temperatur der Suspension (S) liegt beim Abführen aus dem Kristallisator (I) unterhalb der Temperatur, mit der die Lösung (L) in den Kristallisator (I) zugeführt wurde. Bevorzugt liegt die Temperatur der Suspension (S) beim Abführen aus dem Kristallisator (I) im Bereich von 30 bis 70 °C, besonders bevorzugt im Bereich von 45 bis 65 °C und insbesondere bevorzugt im Bereich von 55 bis 60 °C.

Die Kristallisation der Dicarbonsäure in dem Kristallisator (I) kann kontinuierlich oder diskontinuierlich erfolgen. Bevorzugt erfolgt sie kontinuierlich. Im Falle einer kontinuierlichen Kristallisation wird die Lösung (L) dem Kristallisator (I) kontinuierlich zugeführt, während gleichzeitig die bei der Kristallisation erhaltene Suspension (S) kontinuierlich aus dem Kristallisator (I) abgeführt wird.

Die Lösung (L) wandelt sich im Kristallisator (I) in die Suspension (S) um. Die Ausführungen und Bevorzugungen im Hinblick auf die Lösung (L) beziehen sich erfindungsgemäß auf die Lösung (L) vor der Kristallisation, das heißt beim Eintritt der Lösung (L) in den Kristallisator (I). Die Ausführungen und Bevorzugungen im Hinblick auf die Suspension (S) beziehen sich erfindungsgemäß auf die Suspension (S) beim Austritt aus dem Kristallisator (I).

Die Menge an Lösung (L), die dem Kristallisator (I) zugeführt wird, und die Menge an Suspension (S), die aus dem Kristallisator (I) abgeführt wird, wird bevorzugt so eingestellt, dass die Verweilzeit der Dicarbonsäure im Kristallisator (I) im Bereich von 0,1 bis 8 Stunden liegt, besonders bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 4 Stunden und insbesondere bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 3 Stunden.

Unter der Verweilzeit der Dicarbonsäure, wird die Zeit verstanden, zwischen dem Eintritt der Lösung (L), die die gelöste Dicarbonsäure enthält, in den Kristallisator (I) und dem Austritt der Suspension (S), die die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) enthält, aus dem Kristallisator (I). Die Verweilzeit beschreibt also die Zeit, die die Dicarbonsäure im Kristallisator (I) verbleibt, unabhängig von der Form der Dicarbonsäure, also unabhängig davon, ob sie beispielsweise gelöst oder als Dicarbonsäure-Kristalle im Kristallisator (I) vorliegt.



## 14

Bei der Kristallisation in Verfahrensschritt a) können geringe Mengen Feinanteil (F) entstehen. In einer Ausführungsform enthält die Suspension (S) neben den suspendierten Dicarbonsäure-Kristallen (sDK) somit auch Feinanteil (F).

5 In dieser Ausführungsform enthält die Suspension (S) Feinanteil (F) in Mengen im Bereich von 0,1 bis 15 Gew.-% bevorzugt im Bereich von 1 bis 10 Gew.-% und insbesondere bevorzugt im Bereich von 2 bis 8 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht an suspendierten Dicarbonsäure-Kristallen (sDK) und Feinanteil (F), bestimmt durch Laserbeugung.

10

Laserbeugung zur Bestimmung der Menge an Feinanteil und zur Bestimmung der mittleren Kristallgröße ist dem Fachmann als solche bekannt. Die Laserbeugung kann beispielsweise an einer Suspension durchgeführt werden, wobei als Suspensionsmedium beispielsweise die Mutterlauge (M) dient. Ebenso ist es möglich, die Laserbeugung aus Substanz, also ohne Suspensionsmedium durchzuführen.

15

Die Suspension (S) enthält in einer erfindungsgemäßen Ausführungsform im Bereich von 15 bis 45 Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK), bevorzugt im Bereich von 20 bis 40 Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und insbesondere bevorzugt im Bereich von 25 bis 35 Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK), bezogen auf das Gesamtgewicht der Suspension (S). Die Suspension (S) enthält einen größeren Anteil an suspendierten Dicarbonsäure-Kristallen (sDK) als die Lösung (L).

20

25 In einer erfindungsgemäßen Ausführungsform enthält die Suspension (S) im Bereich von 55 bis 85 Gew.-% der Mutterlauge (M), bevorzugt im Bereich von 60 bis 80 Gew.-% der Mutterlauge (M) und insbesondere bevorzugt im Bereich von 65 bis 75 Gew.-% der Mutterlauge (M), bezogen auf das Gesamtgewicht der Suspension (S).

25

30 Die Summe der Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und der Mutterlauge (M), die in der Suspension (S) enthalten sind, ergeben 100 %.

30

Die Mutterlauge (M) enthält üblicherweise eine niedrigere Konzentration an gelöster Dicarbonsäure als die Lösung (L).

35

Im Allgemeinen enthält die Mutterlauge (M) im Bereich von 2 bis 20 Gew.-% gelöste Dicarbonsäure, bevorzugt im Bereich von 5 bis 15 Gew.-% und insbesondere bevorzugt im Bereich von 8 bis 12 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der Mutterlauge (M).

40

Verfahrensschritt b)

In Verfahrensschritt b) wird die Suspension (S) aus Verfahrensschritt a) durch eine Kreiselpumpe in die Trocknungsvorrichtung (II;III) überführt.

5

„Eine Kreiselpumpe“ bedeutet erfindungsgemäß sowohl genau eine Kreiselpumpe als auch zwei oder mehr Kreiselpumpen. Die Kreiselpumpen können sowohl seriell als auch parallel geschaltet sein. Bevorzugt sind die Kreiselpumpen parallel geschaltet.

10 Kreiselpumpen sind dem Fachmann als solche bekannt. Kreiselpumpen umfassen beispielsweise Radialpumpen, Diagonalpumpen, Seitenkanalpumpen, Peripheralradpumpen, Kanalradpumpen, Freistrompumpen und Axialpumpen.

Erfindungsgemäß bevorzugt als Kreiselpumpen sind Freistrompumpen.

15

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem die Kreiselpumpe in Verfahrensschritt b) eine Freistrompumpe ist.

20 Eine Freistrompumpe umfasst eine Eingangsöffnung, eine Ausgangsöffnung, eine Laufradkammer, in welcher ein Laufrad angeordnet ist, und eine sich vor der Laufradkammer erstreckende Wirbelkammer. Das Laufrad umfasst einen Laufradboden, einen Nabenkörper, eine Tellerfläche und Schaufeln. Die sich vor der Laufradkammer erstreckende Wirbelkammer wird durch die Schaufeln nicht durchstrichen. Üblicherweise ist die Eingangsöffnung axial an der Stirnseite des Laufrades angeordnet. Die Ausgangsöffnung kann ebenfalls axial an der Stirnseite des

25 Laufrades angeordnet sein. Darüber hinaus ist es möglich, dass die Ausgangsöffnung radial am Laufrad angeordnet ist.

30 Geeignete Freistrompumpen sind beispielsweise in der EP 2 497 956 beschrieben, auf die hiermit Bezug genommen wird.

Durch die erfindungsgemäß eingesetzte Kreiselpumpe wird der Anteil der Suspension (S), der mit dem Laufrad der Kreiselpumpe in Kontakt kommt, reduziert, gegenüber im Stand der Technik eingesetzten Pumpen. Der Anteil der Suspension (S)

35 der mit dem Laufrad der Kreiselpumpe in Kontakt kommt, liegt bevorzugt im Bereich von 5 bis 50 %, besonders bevorzugt im Bereich von 8 bis 30 % und insbesondere bevorzugt im Bereich von 10 bis 20 %, bezogen auf die Gesamtmenge der Suspension (S).

40 Der Anteil der Suspension (S), der nicht mit dem Laufrad in Kontakt kommt, wird in Rotation versetzt und so zur Ausgangsöffnung geführt. Eine derartige Rotation bedeutet, dass die Suspension (S) einer Scher- und Reibungsbeanspruchung

## 16

ausgesetzt wird. Es wurde allerdings überraschend gefunden, dass die Scher- und Reibungsbeanspruchung die auf die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in der erfindungsgemäßen Kreiselpumpe wirkt, deutlich geringer ist, als die mechanische Belastung, insbesondere die Prallbeanspruchung, die auf die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) wirkt, wenn Pumpen wie sie im Stand der Technik eingesetzt werden, verwendet werden. Daher wird durch den Einsatz der erfindungsgemäßen Kreiselpumpen überraschenderweise weniger Feinanteil (F) gebildet als mit im Stand der Technik beschriebenen Verfahren.

Die erfindungsgemäß in Verfahrensschritt b) eingesetzte Kreiselpumpe überführt die Suspension (S) im Allgemeinen mit einem Förderstrom im Bereich von 1 bis 150 Kubikmeter Suspension (S) pro Stunde in die Trocknungsvorrichtung (II; III), bevorzugt im Bereich von 5 bis 100 Kubikmeter Suspension (S) pro Stunde und insbesondere bevorzugt im Bereich von 10 bis 35 Kubikmeter Suspension (S) pro Stunde.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem die Suspension (S) in Verfahrensschritt b) mit einem Förderstrom im Bereich von 1 bis 150 Kubikmeter Suspension (S) pro Stunde durch die Kreiselpumpe in die Trocknungsvorrichtung (II; III) überführt wird.

Die erfindungsgemäß eingesetzten Kreiselpumpen werden üblicherweise mit einer Drehzahl im Bereich von 600 bis 4000  $\text{min}^{-1}$  betrieben, bevorzugt im Bereich von 1000 bis 3500  $\text{min}^{-1}$  und insbesondere bevorzugt im Bereich von 1500 bis 3100  $\text{min}^{-1}$ .

Üblicherweise liegt die Förderhöhe der Kreiselpumpe im Bereich von 10 bis 120 m, bevorzugt im Bereich von 20 bis 100 m und insbesondere bevorzugt im Bereich von 30 bis 80 m.

Die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III) liegt bevorzugt im Bereich von 100 bis 1500  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt im Bereich von 160 bis 1190  $\mu\text{m}$  und insbesondere bevorzugt im Bereich von 240 bis 1140  $\mu\text{m}$ , bestimmt durch Laserbeugung.

Es versteht sich von selbst, dass die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III) kleiner oder gleich der mittleren Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) direkt nach der Kristallisation gemäß Verfahrensschritt a) im Kristallisator (I) ist.

Bevorzugt ist die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III) um 0,1 bis 20 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) direkt nach der

Kristallisation im Kristallisator (I), besonders bevorzugt um 0,5 bis 10 % und insbesondere bevorzugt um 1 bis 5 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) direkt nach der Kristallisation im Kristallisator (I).

5

Wenn also beispielsweise die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) aus Verfahrensschritt a) im Bereich von 200 bis 1200  $\mu\text{m}$  liegt und die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III) um 1 bis 5 % kleiner ist als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) aus Verfahrensschritt a), dann liegt die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III) im Bereich von 190 bis 1188  $\mu\text{m}$ .

10

Der in der Suspension (S) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III) enthaltene Feinanteil (F) liegt im Allgemeinen im Bereich von 1 bis 18 Gew.-%, bevorzugt im Bereich von 3 bis 13 Gew.-% und insbesondere bevorzugt im Bereich von 4 bis 10 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht an suspendierten Dicarbonsäure-Kristallen (sDK) und Feinanteil (F) bei Eintritt in die Trocknungsvorrichtung (II; III), bestimmt durch Laserbeugung.

15

#### Verfahrensschritt c)

In Verfahrensschritt c) werden die in der Suspension (S) enthaltenen suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in der Trocknungsvorrichtung (II; III), in die die Suspension (S) in Verfahrensschritt b) überführt worden ist, von der Mutterlauge (M) abgetrennt.

20

Die erfindungsgemäß eingesetzte Trocknungsvorrichtung (II; III) kann sowohl diskontinuierlich als auch kontinuierlich betrieben werden. Bevorzugt wird die Trocknungsvorrichtung (II; III) kontinuierlich betrieben.

25

Geeignete Trocknungsvorrichtungen (II; III) sind dem Fachmann als solche bekannt.

In einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung umfasst die Trocknungsvorrichtung (II; III) eine mechanische Trocknungsvorrichtung (II) und eine thermische Trocknungsvorrichtung (III).

30

Umfasst die Trocknungsvorrichtung (II; III) eine mechanische Trocknungsvorrichtung (II) und eine thermische Trocknungsvorrichtung (III), so umfasst das Abtrennen der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) in der Trocknungsvorrichtung (II; III) in Verfahrensschritt c) beispielsweise die folgenden Schritte:

35

40

5 c1) mechanisches Abtrennen der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) in der mechanischen Trocknungsvorrichtung (II), unter Erhalt vorgetrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (vDK), die Reste des Lösungsmittels (LM) enthalten, und

10 c2) thermisches Abtrennen zumindest eines Teils der Reste des Lösungsmittels (LM) von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) in der thermischen Trocknungsvorrichtung (III) unter Erhalt der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK).

15 Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem die Trocknungsvorrichtung (II; III) eine mechanische Trocknungsvorrichtung (II) und eine thermische Trocknungsvorrichtung (III) umfasst, wobei

20 c1) in der mechanischen Trocknungsvorrichtung (II) die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) mechanisch abgetrennt werden, unter Erhalt vorgetrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (vDK), die Reste des Lösungsmittels (LM) enthalten, und

25 c2) in der thermischen Trocknungsvorrichtung (III) zumindest ein Teil der Reste des Lösungsmittels (LM) von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) aus Verfahrensschritt c1) thermisch abgetrennt wird unter Erhalt der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK).

30 Als mechanische Trocknungsvorrichtung (II) können prinzipiell alle dem Fachmann bekannten mechanischen Trocknungsvorrichtungen eingesetzt werden. Dazu zählen beispielsweise Sedimentationsreaktoren, Filter und Zentrifugen. Als mechanische Trocknungsvorrichtung (II) bevorzugt sind Zentrifugen.

35 Geeignete Zentrifugen sind dem Fachmann als solche bekannt. Bevorzugt sind schubfördernde Zentrifugen, Vollmantelzentrifugen und/oder Schneckenausstragszentrifugen (Dekanter). Schubfördernde Zentrifugen sind insbesondere bevorzugt.

40 Wenn eine Zentrifuge als mechanische Trocknungsvorrichtung (II) im erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt wird, so wird diese bevorzugt mit einer Drehzahl im Bereich von 400 bis 1200 Umdrehungen pro Minute betrieben, besonders bevorzugt im Bereich von 600 bis 1000 Umdrehungen pro Minute und insbesondere im Bereich von 700 bis 800 Umdrehungen pro Minute.

Die Schubfrequenz der in einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung eingesetzten schubfördernden Zentrifuge liegt im Allgemeinen im Bereich von 1 bis

## 19

80 min<sup>-1</sup>, bevorzugt im Bereich von 10 bis 60 min<sup>-1</sup> und besonders bevorzugt im Bereich von 20 bis 40 min<sup>-1</sup>.

5 In einer erfindungsgemäßen Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält die gegebenenfalls eingesetzte Zentrifuge beim Anfahren zumindest einen Teil der Suspension (S). Dadurch kann die mechanische Belastung, die auf die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) wirkt, reduziert werden.

10 In Verfahrensschritt c1) werden in der mechanischen Trocknungsvorrichtung (II) die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) mechanisch zumindest teilweise von der ebenfalls in der Suspension (S) enthaltenen Mutterlauge (M) abgetrennt, unter Erhalt vorgetrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (vDK).

15 In einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird die mechanische Abtrennung bei einer Temperatur im Bereich von 40 bis 70 °C durchgeführt, bevorzugt im Bereich von 50 bis 60 °C und insbesondere bevorzugt im Bereich von 55 bis 58 °C.

20 Die mittlere Kristallgröße der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) liegt im Allgemeinen im Bereich von 100 bis 1500 µm, bevorzugt im Bereich von 150 bis 1170 µm und insbesondere bevorzugt im Bereich von 225 bis 1120 µm, bestimmt durch Laserbeugung.

25 Es versteht sich von selbst, dass die mittlere Kristallgröße der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK), die in Verfahrensschritt c1) erhalten werden, kleiner oder gleich der mittleren Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a) ist.

30 Die mittlere Kristallgröße der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) ist bevorzugt um 0,5 bis 25 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a), besonders bevorzugt um höchstens 1 bis 15 % kleiner und insbesondere bevorzugt um 3 bis 10 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a).

35 Der Feinanteil (F), den die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) enthalten, liegt üblicherweise im Bereich von 1,5 bis 19 Gew.-%, bevorzugt im Bereich von 3,5 bis 14 Gew.-% und insbesondere bevorzugt im Bereich von 4,5 bis 11 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht an getrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (tDK) und Feinanteil (F), bestimmt durch Laserbeugung.

40 Die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) enthalten Reste des Lösungsmittels (LM).

Unter „Reste des Lösungsmittels (LM)“ werden erfindungsgemäß höchstens 50 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), bevorzugt höchstens 30 Gew.-% des Lösungsmittels (LM) und insbesondere bevorzugt höchstens 22 Gew.-% der Lösungsmittels (LM) verstanden, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK).

In einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthalten die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) von 2 bis 50 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), bevorzugt von 3 bis 30 Gew.-% des Lösungsmittels (LM) und insbesondere bevorzugt von 4 bis 22 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), bezogen auf das Gesamtgewicht der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK).

Es versteht sich von selbst, dass die Reste des Lösungsmittel (LM), die in den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) enthalten sind, dasselbe Lösungsmittel (LM) enthalten wie die Mutterlauge (M), die in der Suspension (S) enthalten war.

Die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK), die in Verfahrensschritt c1) erhalten werden, können von der mechanischen Trocknungsvorrichtung (II) in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) mit allen dem Fachmann bekannten Methoden überführt werden. Beispielsweise können die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) mit einer Förderschnecke und/oder gravimetrisch in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) überführt werden.

Bevorzugt werden die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) gravimetrisch in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) überführt. „gravimetrisch“ bedeutet vorliegend, dass die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) unter Ausnutzung der Schwerkraft abgeworfen werden.

Durch die gravimetrische Überführung der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) wird die mechanische Belastung für die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) reduziert. Dadurch wird der im Verfahren der vorliegenden Erfindung gebildete Feinanteil (F) ebenfalls reduziert gegenüber den Verfahren wie sie im Stand der Technik beschrieben sind.

In Verfahrensschritt c2) wird zumindest ein Teil der Reste des Lösungsmittels (LM) von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) in der thermischen Trocknungsvorrichtung (III) thermisch abgetrennt.

Unter „zumindest ein Teil der Reste des Lösungsmittels (LM)“ wird vorliegend verstanden, dass mindestens 90 Gew.-% der Reste des Lösungsmittels (LM)

## 21

abgetrennt werden, bevorzugt mindestens 95 Gew.-% und insbesondere bevorzugt mindestens 99 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Reste des Lösungsmittels (LM).

- 5 Üblicherweise können in Verfahrensschritt c2) höchstens 99,91 Gew.-% der Reste des Lösungsmittels (LM) abgetrennt werden, bevorzugt höchstens 99,95 Gew.-% und insbesondere höchstens 99,99 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der Reste des Lösungsmittels (LM).
- 10 Unter „thermischer Abtrennung“ wird vorliegend verstanden, dass das Lösungsmittel (LM) durch Verdunstung oder Verdampfen von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) abgetrennt wird. Dies kann beispielsweise durch Erhöhung der Temperatur und/oder durch das Anlegen eines Unterdrucks in der thermischen Trocknungsvorrichtung (III) erfolgen.

15

Die Temperatur während der thermischen Abtrennung zumindest eines Teils der Reste des Lösungsmittels (LM) in Verfahrensschritt c2) liegt im Allgemeinen im Bereich von 80 bis 150 °C, bevorzugt im Bereich von 100 bis 150 °C und insbesondere bevorzugt in einem Bereich von 120 bis 150 °C. Verfahrensschritt c2) wird bevorzugt bei einer

20 Temperatur durchgeführt, die unterhalb des Schmelzpunktes der Dicarbonsäure liegt.

Der Druck während der thermischen Abtrennung zumindest eines Teils der Reste des Lösungsmittels (LM) in Verfahrensschritt c2) liegt bevorzugt im Bereich von 10 bis 80 mbar und insbesondere bevorzugt im Bereich von 20 bis 50 mbar und am meisten

25 bevorzugt im Bereich von 25 bis 35 mbar.

Die Verweilzeit der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) in der thermischen Trocknungsvorrichtung (III) beträgt im Allgemeinen 1 bis 24 Stunden, bevorzugt 3 bis 20 Stunden und insbesondere bevorzugt 5 bis 15 Stunden.

30

Geeignete thermische Trocknungsvorrichtungen (III) sind dem Fachmann als solche bekannt. Geeignete thermische Trocknungsvorrichtungen (III) sind beispielsweise Konvektionstrockner, Hordentrockner, Kammertrockner, Kanaltrockner, Flachbahntrockner, Tellerrockner, Drehtrommeltrockner, Rieselschichttrockner, Siebbandtrockner, Stromtrockner, Zerstäubungstrockner, Wirbelschichttrockner,

35 Fließbettrockner, Schaufeltrockner, Kugelbettrockner, Kontaktrockner, Heiztellerrockner, Dünnschichttrockner, Walzentrockner, Bandtrockner, Siebtrommeltrockner, Schneckenrockner, Taumeltrockner, Kontakt-Scheibentrockner und Gefriertrockner.

40

Erfindungsgemäß bevorzugt als thermische Trocknungsvorrichtungen (III) sind Wirbelschichttrockner.

In einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird ein Gas in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) eingeleitet und so zumindest Teile der Reste des Lösungsmittels (LM) von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) abgetrennt. Als Gas eignet sich prinzipiell jedes dem Fachmann bekannte Gas, das sich bei den Bedingungen der thermischen Trocknung inert gegenüber den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) verhält. Geeignet als Gas ist beispielsweise Stickstoff oder Luft. Bevorzugt als Gas ist Luft.

Das Gas kann gegebenenfalls in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) rückgeführt werden, um die Wirtschaftlichkeit des vorliegenden Verfahrens zu steigern. Bevor das Gas in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) rückgeführt wird, wird es im Allgemeinen von gegebenenfalls mitgerissenen Dicarbonsäure-Kristallen sowie den Teilen der Reste des Lösungsmittels (LM) befreit. Dies kann nach dem Fachmann bekannten Methoden erfolgen. Beispielsweise können mitgerissene Dicarbonsäure-Kristalle durch Zyklonabscheider entfernt werden, das Lösungsmittel (LM) kann beispielsweise durch Nassentstauber wie etwa Rotoklon-Wäscher oder Venturi-Wäscher auskondensiert werden.

In einer Ausführungsform umfasst die thermische Trocknungsvorrichtung (III) daher auch Zyklonabscheider, Rotoklon-Wäscher und/oder Venturi-Wäscher.

Das Gas kann beispielsweise durch Wärmetauscher auf die zur thermischen Abtrennung geeignete Temperatur gebracht werden.

Die in Verfahrensschritt c) erhaltenen getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) enthalten üblicherweise noch Spuren des Lösungsmittels (LM).

Unter „Spuren des Lösungsmittels (LM)“ werden höchstens 0,3 Gew.-% des Lösungsmittels (LM) verstanden, bevorzugt höchstens 0,25 Gew.-% und insbesondere bevorzugt höchstens 0,2 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK).

Im Allgemeinen enthalten die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) von 0,01 bis 0,3 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), bevorzugt von 0,05 bis 0,25 Gew.-% des Lösungsmittels (LM) und insbesondere bevorzugt von 0,1 bis 0,2 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK).

Es versteht sich von selbst, dass die in Verfahrensschritt c2) erhaltenen getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) weniger Lösungsmittel (LM) enthalten, als die

## 23

vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK), die gegebenenfalls in Verfahrensschritt c1) erhalten werden.

Die mittlere Kristallgröße der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) liegt  
5 bevorzugt im Bereich von 100 bis 1500  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt im Bereich von 140 bis 1160  $\mu\text{m}$  und insbesondere bevorzugt im Bereich von 210 bis 1110  $\mu\text{m}$ , bestimmt durch Laserbeugung.

Es versteht sich von selbst, dass die mittlere Kristallgröße der getrockneten  
10 Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) kleiner oder gleich der mittleren Kristallgröße der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK) ist und dass die mittlere Kristallgröße der trockenen Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) kleiner oder gleich der mittleren Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristall (sDK) in Verfahrensschritt a) ist.

15 Bevorzugt ist die mittlere Kristallgröße der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) um 1 bis 30 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a), bevorzugt um höchstens 2 bis 20 % und insbesondere bevorzugt um 4 bis 12 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a).

20

In Verfahrensschritt c) werden die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) abgetrennt. In einer Ausführungsform wird zusammen mit den suspendierten Dicarbonsäure-Kristallen (sDK) auch der Feinanteil (F) von der Mutterlauge (M) abgetrennt. Dann enthalten die in Verfahrensschritt c) erhaltenen  
25 getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) den Feinanteil (F).

Der Feinanteil (F), den die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) enthalten, liegt üblicherweise im Bereich von 2 bis 21 Gew.-%, bevorzugt im Bereich von 4 bis 16 Gew.-% und insbesondere bevorzugt im Bereich von 5 bis 12 Gew.-%, bezogen  
30 auf das Gesamtgewicht an getrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (tDK) und Feinanteil (F), bestimmt durch Laserbeugung.

Die in Verfahrensschritt c) erhaltenen getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) sind bereits rieselfähig und lagerstabil. Nach Verfahrensschritt c) liegen sie allerdings in der  
35 Trocknungsvorrichtung (II; III) vor und müssen noch in eine Lagervorrichtung (IV) überführt werden.

Bei der Abtrennung der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) in Verfahrensschritt c) wird außerdem die Mutterlauge (M) erhalten.

40

## 24

Die Abtrennung der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) kann vollständig erfolgen. Dann enthält die Mutterlauge (M) keine suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK).

- 5 Die Abtrennung der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) muss nicht zwingend vollständig erfolgen. In einer weiteren Ausführungsform erfolgt die Abtrennung der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) unvollständig. In dieser Ausführungsform enthält die Mutterlauge (M) Reste der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK).  
10 Ebenso kann die Mutterlauge (M) Reste des Feinanteils (F) enthalten.

- Die in Verfahrensschritt c) erhaltene Mutterlauge (M) enthält beispielsweise bis 5 Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK), bevorzugt bis 2 Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und insbesondere bevorzugt bis  
15 0,5 Gew.-% der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK), bezogen auf das Gesamtgewicht der Mutterlauge (M).

- Unter „Reste der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK)“ werden 0,1 bis 5 Gew.-%, bevorzugt 0,5 bis 3 Gew.-% und insbesondere bevorzugt 1 bis 2 Gew.-%  
20 der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) verstanden, bezogen auf das Gesamtgewicht der Mutterlauge (M).

Die Mutterlauge (M) kann beispielsweise in den Kristallisor (I) rückgeführt werden.

25 Verfahrensschritt d)

- In Verfahrensschritt d) werden die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) durch ein Dichtstromfördersystem in eine Lagervorrichtung (IV) unter Erhalt der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) überführt.  
30

Geeignete Dichtstromfördersysteme sind dem Fachmann als solche bekannt.

- In einem Dichtstromfördersystem werden die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) mit Hilfe eines Gases durch ein Förderrohr bewegt. Dabei werden die  
35 getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) fluidisiert und als Dichtstrom durch das Förderrohr geleitet.

- Unter „Dichtstrom“ wird vorliegend verstanden, dass sich die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) im Förderrohr nicht wie frei fliegende Partikel verhalten,  
40 sondern wie ein Fluid.

## 25

Als Gase zur Förderung der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) in dem Dichtstromfördersystem sind prinzipiell alle dem Fachmann bekannten Gase geeignet, die sich bei den Bedingungen in Verfahrensschritt d) inert gegenüber den getrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (tDK) verhalten. Geeignete Gase sind beispielsweise Stickstoff oder Luft. Bevorzugt als Gas ist Luft.

Die Geschwindigkeit des Gases liegt im Allgemeinen im Bereich von 400 bis 1600 Kubikmetern pro Stunde, bevorzugt im Bereich von 700 bis 1500 Kubikmetern pro Stunde und insbesondere bevorzugt im Bereich von 900 bis 1300 Kubikmetern pro Stunde.

Die Geschwindigkeit, mit der die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) durch das Dichtstromfördersystem in die Lagervorrichtung (IV) überführt werden, liegt im Allgemeinen im Bereich von 1 bis 30 Meter pro Sekunde (m/s), bevorzugt im Bereich von 3 bis 15 Meter pro Sekunde und insbesondere bevorzugt im Bereich von 3,5 bis 9 Meter pro Sekunde.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) in Verfahrensschritt d) mit einer Geschwindigkeit im Bereich von 1 bis 30 m/s durch das Dichtstromfördersystem in die Lagervorrichtung (IV) überführt werden.

Der Druck in dem Förderrohr liegt bevorzugt im Bereich von 1,7 bis 2,1 bar, besonders bevorzugt bei 1,8 bis 2,0 bar.

Die Beladung im Förderrohr liegt üblicherweise im Bereich von 5 bis 15 kg getrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) pro kg Gas, bevorzugt im Bereich von 7 bis 12 kg getrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) pro kg Gas und insbesondere bevorzugt im Bereich von 9 bis 10 kg getrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) pro kg Gas.

In einer bevorzugten Ausführungsform wird in das Förderrohr des Dichtstromfördersystems zusätzlich Gas durch ein Nebenleitungsrohr eingespeist. Das Dichtstromfördersystem umfasst dann ein Förderrohr und ein Nebenleitungsrohr. Durch das Förderrohr werden die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) zusammen mit dem Gas geleitet, durch das Nebenleitungsrohr wird ausschließlich das Gas geleitet.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem das Dichtstromfördersystem in Verfahrensschritt d) ein Förderrohr und ein Nebenleitungsrohr umfasst.

## 26

Das Nebenleitungsrohr besitzt über Düsen Verbindungen zu dem Förderrohr und kann so Gas in das Förderrohr einspeisen. Die Düsen sind üblicherweise in einem Abstand im Bereich 0,5 bis 2 m angeordnet, bevorzugt im Bereich von 0,7 bis 1,5 m und insbesondere bevorzugt im Bereich von 0,9 bis 1,1 m.

5

Für die Geschwindigkeit des Gases, die Beladung und den Druck im Förderrohr sowie die Geschwindigkeit der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) gelten die zuvor beschriebenen Ausführungen.

10 Das Verhältnis des Durchmessers des Nebenleitungsrohrs zum Durchmesser des Förderrohrs liegt in einer bevorzugten Ausführungsform im Bereich von 1 : 3 bis 1 : 8, bevorzugt im Bereich von 1 : 4 bis 1 : 6 und insbesondere bevorzugt im Bereich von 1 : 4,5 bis 1 : 5,5.

15 Das Nebenleitungsrohr kann außerhalb des Förderrohrs angeordnet sein, ebenso ist es möglich, dass das Nebenleitungsrohr innerhalb des Förderrohrs angeordnet ist. Erfindungsgemäß bevorzugt ist das Nebenleitungsrohr innerhalb des Förderrohrs angeordnet. Insbesondere bevorzugt ist das Nebenleitungsrohr innerhalb des Förderrohrs im oberen Bereich des Förderrohrs angeordnet.

20

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch Verfahren, bei dem das Nebenleitungsrohr innerhalb des Förderrohrs angeordnet ist.

25 Als Lagervorrichtung (IV), in die die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) in Verfahrensschritt d) überführt werden, eignen sich prinzipiell alle den Fachmann bekannten Lagervorrichtungen. Dazu zählen beispielsweise Silos, Bunker, Tanks und Big Bags.

30 In einer erfindungsgemäß bevorzugten Ausführungsform ist die Lagervorrichtung (IV) ein Silo. In einer insbesondere bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird durch das Silo kontinuierlich Gas geleitet. Zur Durchleitung durch das Silo eignen sich prinzipiell alle dem Fachmann bekannten Gase, die bei den Lagerbedingungen in der Lagervorrichtung (IV) gegenüber den rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristallen (DK) inert sind. Bevorzugt ist das Gas ein  
35 trockenes Gas, insbesondere bevorzugt als Gas ist trockene Luft.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren, bei dem als Lagervorrichtung (IV) in Verfahrensschritt d) ein Silo verwendet wird und bei dem durch das Silo kontinuierlich Gas durchgeleitet wird.

40

Die in Verfahrensschritt d) erhaltenen rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) weisen üblicherweise eine mittlere Kristallgröße im Bereich von 100 bis

1500  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt im Bereich von 120 bis 1150  $\mu\text{m}$  und insbesondere bevorzugt im Bereich von 180 bis 110  $\mu\text{m}$  auf, bestimmt durch Laserbeugung.

5 Es versteht sich von selbst, dass die mittlere Kristallgröße der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) kleiner oder gleich der mittleren Kristallgröße der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) ist und dass die mittlere Kristallgröße der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) kleiner oder gleich der mittleren Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) ist.

10

Die mittlere Kristallgröße der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) aus Verfahrensschritt d) ist bevorzugt um 2 bis 40 %, bevorzugt um 4 bis 25 % und insbesondere bevorzugt um 6 bis 15 % kleiner als die mittlere Kristallgröße der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) aus Verfahrensschritt a), jeweils

15

Die rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) enthalten üblicherweise eine geringe Restfeuchte. Unter Restfeuchte wird der Gehalt an Lösungsmittel (LM) in den rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-

20

Kristallen (DK) verstanden. Die rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) enthalten bevorzugt bis höchstens 0,2 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), besonders bevorzugt bis höchstens 0,12 Gew.-% des Lösungsmittels (LM), bezogen auf das Gesamtgewicht der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK).

25

Der Anteil an Lösungsmittel (LM) in den rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristallen (DK), die in Verfahrensschritt d) erhalten werden, ist üblicherweise geringer als der Anteil an Lösungsmittel (LM) in den getrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (tDK), die in Verfahrensschritt c) erhalten werden.

30

Die in Verfahrensschritt d) erhaltenen rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) enthalten üblicherweise einen Feinanteil (F) im Bereich von 3 bis 25 Gew.-%, bevorzugt im Bereich von 4 bis 20 Gew.-% und insbesondere bevorzugt im Bereich von 6 bis 15 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK) und des Feinanteils (F),

35

bestimmt durch Laserbeugung

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind somit auch rieselfähige und lagerstabile Dicarbonsäure-Kristalle (DK) erhältlich nach dem erfindungsgemäßen Verfahren.

40

Eine beispielhafte bevorzugte Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist schematisch in Figur 1 gezeigt:

In Verfahrensschritt a) wird die Dicarbonsäure aus der Lösung (L; 1) in dem Kristallisator (I) kristallisiert unter Erhalt der Suspension (S; 3)

- 5 Die Suspension (S; 3) wird in Verfahrensschritt b) durch eine Kreiselpumpe in die Trocknungsvorrichtung (II; III) überführt. In Figur 1 besteht die Trocknungsvorrichtung (II; III) aus einer mechanischen Trocknungsvorrichtung (II) und einer thermischen Trocknungsvorrichtung (III).
- 10 In Verfahrensschritt c1) werden die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in der mechanischen Trocknungsvorrichtung (II) mechanisch von der Mutterlauge (M; 5) abgetrennt, unter Erhalt der vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK; 4), die Reste des Lösungsmittels (LM) enthalten.
- 15 Die vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (vDK; 4) werden in die thermische Trocknungsvorrichtung (III) überführt. Dort werden in Verfahrensschritt c2) zumindest Teile der Reste des Lösungsmittels (LM; 6) von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK; 4) beispielsweise durch ein Gas (8) abgetrennt, unter Erhalt der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK; 7).
- 20 In Verfahrensschritt d) werden die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK; 7) in die Lagervorrichtung (IV) durch ein Dichtstromfördersystem überführt, unter Erhalt der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK).

25 Bezugszeichenliste

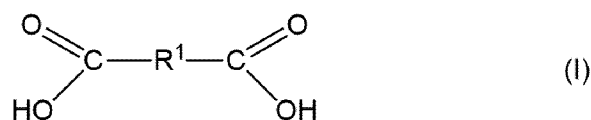
- I Kristallisator
- II mechanische Trocknungsvorrichtung
- III thermische Trocknungsvorrichtung
- 30 IV Lagervorrichtung
  
- 1 Lösung (L)
- 2 Teile des Lösungsmittels (LM)
- 3 Suspension (S)
- 35 4 vorgetrocknete Dicarbonsäure-Kristalle (vDK)
- 5 Mutterlauge (M)
- 6 Reste des Lösungsmittels (LM)
- 7 getrocknete Dicarbonsäure-Kristalle (tDK)
- 8 Gas

## Patentansprüche

- 5 1. Verfahren zur Herstellung von rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristallen (DK), umfassend die Schritte
- 10 a) Kristallisation einer Dicarbonsäure aus einer Lösung (L), die ein Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält, in einem Kristallisor (I) unter Erhalt einer Suspension (S), enthaltend suspendierte Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) und eine Mutterlauge (M), die das Lösungsmittel (LM) und gelöste Dicarbonsäure enthält,
- 15 b) Überführen der Suspension (S) aus Verfahrensschritt a) durch eine Kreiselpumpe in eine Trocknungsvorrichtung (II; III),
- 20 c) Abtrennen der suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) in der Trocknungsvorrichtung (II; III) unter Erhalt getrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (tDK)
- 25 d) Überführen der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) aus Verfahrensschritt c) durch ein Dichtstromfördersystem in eine Lagervorrichtung (IV) unter Erhalt der rieselfähigen und lagerstabilen Dicarbonsäure-Kristalle (DK).
- 30 2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Kreiselpumpe in Verfahrensschritt b) eine Freistrompumpe ist.
3. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Dichtstromfördersystem in Verfahrensschritt d) ein Förderrohr und ein Nebenleitungsrohr umfasst.
- 35 4. Verfahren gemäß Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass das Nebenleitungsrohr innerhalb des Förderrohrs angeordnet ist.
5. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK) in Verfahrensschritt d) mit einer Geschwindigkeit im Bereich von 1 bis 30 m/s durch das Dichtstromfördersystem in die Lagervorrichtung (IV) überführt werden.

## 30

6. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Suspension (S) in Verfahrensschritt b) mit einem Förderstrom im Bereich von 1 bis 150 Kubikmeter Suspension (S) pro Stunde durch die Kreiselpumpe in die Trocknungsvorrichtung (II; III) überführt wird
- 5
7. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass als Kristallisator (I) in Verfahrensschritt a) ein gerührter Behälter eingesetzt wird, der einen vertikalen, zylindrischen Tank mit Seitenwänden und einem Boden, Mittel zum Zuführen der Lösung (L) und Abführen der Suspension (S), ein im zylindrischen Tank coaxial angeordnetes Leitrohr und einen coaxial am Tankboden angeordneten Blattrührer mit sich drehender coaxialer Welle und Rührblättern aufweist, der die Lösung (L) in radialer Richtung fördert, so dass sich eine Strömung der Lösung (L) in Art eines Schlaufenreaktors einstellt, wobei die Umfangsgeschwindigkeit des Blattrührers 0,5 bis 6 m/s beträgt, und der Leistungseintrag in die Lösung (L) durch den Blattrührer 0,01 bis 5 kW/m<sup>3</sup> beträgt.
- 10
- 15
8. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Trocknungsvorrichtung (II; III) eine mechanische Trocknungsvorrichtung (II) und eine thermische Trocknungsvorrichtung (III) umfasst, wobei
- 20
- c1) in der mechanischen Trocknungsvorrichtung (II) die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) von der Mutterlauge (M) mechanisch abgetrennt werden, unter Erhalt vorgetrockneter Dicarbonsäure-Kristalle (vDK), die Reste des Lösungsmittels (LM) enthalten, und
- 25
- c2) in der thermischen Trocknungsvorrichtung (III) zumindest ein Teil der Reste des Lösungsmittels (LM) von den vorgetrockneten Dicarbonsäure-Kristallen (vDK) aus Verfahrensschritt c1) thermisch abgetrennt wird unter Erhalt der getrockneten Dicarbonsäure-Kristalle (tDK).
- 30
9. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a) eine Dicarbonsäure der allgemeinen Formel (I) enthalten
- 35



worin

- 5 R<sup>1</sup> ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus einer Bindung, einem unsubstituierten oder zumindest monosubstituierten C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkandiyl und einem unsubstituierten oder zumindest monosubstituierten C<sub>6</sub>-C<sub>14</sub>-Arylen, wobei
- die Substituenten ausgewählt sind aus F, Cl, Br, OH, (=O) und C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyl.
- 10 10. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die suspendierten Dicarbonsäure-Kristalle (sDK) in Verfahrensschritt a) eine Dicarbonsäure ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Terephthalsäure, Isophthalsäure, Oxalsäure, Malonsäure, Bernsteinsäure, Glutarsäure, Adipinsäure, Pimelinsäure, Korksäure, Sebacinsäure, Decandicarbonsäure und
- 15 Dodecandicarbonsäure enthalten.
11. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass das Lösungsmittel (LM) in Verfahrensschritt a) mindestens ein Lösungsmittel ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Methanol, Ethanol
- 20 und Wasser enthält.
12. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass als Lagervorrichtung (IV) in Verfahrensschritt d) ein Silo verwendet wird und dass durch das Silo kontinuierlich Gas durchgeleitet wird.
- 25 13. Rieselfähige und lagerstabile Dicarbonsäure-Kristalle (DK) erhältlich durch ein Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 12.

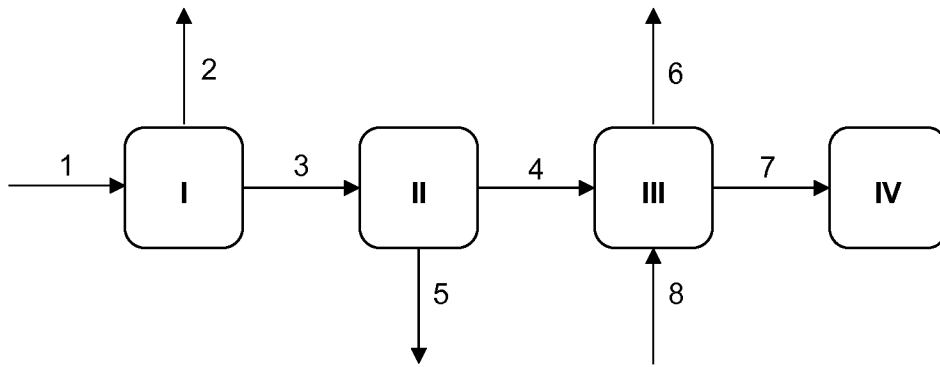


Fig. 1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2015/067519

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
INV. C07C51/43  
ADD.  
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 practicable, search terms used)  
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2010/145961 A1 (RHODIA OPERATIONS [FR]; CARVIN PHILIPPE [FR]; FOUCHER STEPHANIE [FR]) 23 December 2010 (2010-12-23)	13
A	line 6 - page 3, line 5; example 2 -----	1-12
X	DE 197 05 329 A1 (BASF AG [DE]) 13 August 1998 (1998-08-13)	13
A	column 2, line 37 - line 56; example 1 -----	1-12
X	US 3 459 798 A (LASSITER JAMES TURNLEY) 5 August 1969 (1969-08-05)	13
A	abstract; example 1 -----	1-12
X	EP 2 551 256 A1 (MITSUBISHI CHEM CORP [JP]) 30 January 2013 (2013-01-30)	13
A	Abschnitte [0012], [0109], [0134]-[1035], [0289], Abbildung 14 ("centrifugal separator" 23) -----	1-12
	-/--	

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents :

<p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>"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)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
---	---

Date of the actual completion of the international search  15 October 2015	Date of mailing of the international search report  22/10/2015
--	--

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  Fritz, Martin
--	---

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2015/067519

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 1 623 941 A1 (ALCAN TECH & MAN LTD [CH]) 8 February 2006 (2006-02-08) the whole document -----	1-12

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/067519

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2010145961 A1	23-12-2010	CN 102803197 A	28-11-2012
		EP 2443082 A1	25-04-2012
		ES 2545097 T3	08-09-2015
		FR 2946646 A1	17-12-2010
		JP 5490886 B2	14-05-2014
		JP 2012530095 A	29-11-2012
		KR 20120024771 A	14-03-2012
		KR 20140092419 A	23-07-2014
		RU 2012101474 A	27-07-2013
		SG 176741 A1	30-01-2012
		US 2012095263 A1	19-04-2012
		WO 2010145961 A1	23-12-2010
		DE 19705329 A1	13-08-1998
BR 9807326 A	18-04-2000		
CA 2280592 A1	20-08-1998		
CN 1252048 A	03-05-2000		
DE 19705329 A1	13-08-1998		
EP 0968167 A1	05-01-2000		
JP 3984297 B2	03-10-2007		
JP 2001511791 A	14-08-2001		
PL 335023 A1	27-03-2000		
RU 2195442 C2	27-12-2002		
US 6534680 B1	18-03-2003		
WO 9835929 A1	20-08-1998		
US 3459798 A	05-08-1969		
		GB 1143800 A	15-10-2015
		NL 6708725 A	27-12-1967
		US 3459798 A	05-08-1969
EP 2551256 A1	30-01-2013	EP 2551256 A1	30-01-2013
		US 2013018206 A1	17-01-2013
		WO 2011115136 A1	22-09-2011
EP 1623941 A1	08-02-2006	AR 049452 A1	02-08-2006
		AU 2005270520 A1	16-02-2006
		BR PI0514038 A	27-05-2008
		CA 2575566 A1	16-02-2006
		CA 2738719 A1	16-02-2006
		CN 1993279 A	04-07-2007
		EA 200700056 A1	26-10-2007
		EG 24686 A	05-05-2010
		EP 1623941 A1	08-02-2006
		EP 1776301 A1	25-04-2007
		NZ 552569 A	26-02-2010
		UA 88476 C2	26-10-2009
		US 2007212175 A1	13-09-2007
		WO 2006015702 A1	16-02-2006
		ZA 200701899 A	30-04-2008

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES INV. C07C51/43 ADD.		
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		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 2010/145961 A1 (RHODIA OPERATIONS [FR]; CARVIN PHILIPPE [FR]; FOUCHER STEPHANIE [FR]) 23. Dezember 2010 (2010-12-23)	13
A	Zeile 6 - Seite 3, Zeile 5; Beispiel 2 -----	1-12
X	DE 197 05 329 A1 (BASF AG [DE]) 13. August 1998 (1998-08-13)	13
A	Spalte 2, Zeile 37 - Zeile 56; Beispiel 1 -----	1-12
X	US 3 459 798 A (LASSITER JAMES TURNLEY) 5. August 1969 (1969-08-05)	13
A	Zusammenfassung; Beispiel 1 -----	1-12
X	EP 2 551 256 A1 (MITSUBISHI CHEM CORP [JP]) 30. Januar 2013 (2013-01-30)	13
A	Abschnitte [0012], [0109], [0134]-[1035], [0289], Abbildung 14 ("centrifugal separator" 23) -----	1-12
	-/--	
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "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) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "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 "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
15. Oktober 2015		22/10/2015
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  Fritz, Martin

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 1 623 941 A1 (ALCAN TECH & MAN LTD [CH]) 8. Februar 2006 (2006-02-08) das ganze Dokument -----	1-12

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/067519

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2010145961 A1	23-12-2010	CN 102803197 A	28-11-2012
		EP 2443082 A1	25-04-2012
		ES 2545097 T3	08-09-2015
		FR 2946646 A1	17-12-2010
		JP 5490886 B2	14-05-2014
		JP 2012530095 A	29-11-2012
		KR 20120024771 A	14-03-2012
		KR 20140092419 A	23-07-2014
		RU 2012101474 A	27-07-2013
		SG 176741 A1	30-01-2012
		US 2012095263 A1	19-04-2012
		WO 2010145961 A1	23-12-2010
		DE 19705329 A1	13-08-1998
BR 9807326 A	18-04-2000		
CA 2280592 A1	20-08-1998		
CN 1252048 A	03-05-2000		
DE 19705329 A1	13-08-1998		
EP 0968167 A1	05-01-2000		
JP 3984297 B2	03-10-2007		
JP 2001511791 A	14-08-2001		
PL 335023 A1	27-03-2000		
RU 2195442 C2	27-12-2002		
US 6534680 B1	18-03-2003		
WO 9835929 A1	20-08-1998		
US 3459798 A	05-08-1969		
		GB 1143800 A	15-10-2015
		NL 6708725 A	27-12-1967
		US 3459798 A	05-08-1969
EP 2551256 A1	30-01-2013	EP 2551256 A1	30-01-2013
		US 2013018206 A1	17-01-2013
		WO 2011115136 A1	22-09-2011
EP 1623941 A1	08-02-2006	AR 049452 A1	02-08-2006
		AU 2005270520 A1	16-02-2006
		BR PI0514038 A	27-05-2008
		CA 2575566 A1	16-02-2006
		CA 2738719 A1	16-02-2006
		CN 1993279 A	04-07-2007
		EA 200700056 A1	26-10-2007
		EG 24686 A	05-05-2010
		EP 1623941 A1	08-02-2006
		EP 1776301 A1	25-04-2007
		NZ 552569 A	26-02-2010
		UA 88476 C2	26-10-2009
		US 2007212175 A1	13-09-2007
		WO 2006015702 A1	16-02-2006
		ZA 200701899 A	30-04-2008