

CH 677 231 A5



**SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT**  
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

⑪ **CH 677 231 A5**

⑤① Int. Cl.<sup>5</sup>: **C 07 C 17/42**

**Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein**  
Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978

⑫ **PATENTSCHRIFT** A5

⑳ Gesuchsnummer: 705/89

㉒ Anmeldungsdatum: 27.02.1989

③⑩ Priorität(en): 29.02.1988 GB 8804693

㉔ Patent erteilt: 30.04.1991

④⑤ Patentschrift  
veröffentlicht: 30.04.1991

⑦③ Inhaber:  
Glaxo Group Limited, London W1Y 8DH (GB)

⑦② Erfinder:  
Robinson, John Malcolm, Pinner/Middx (GB)

⑦④ Vertreter:  
A. Braun, Braun, Hérítier, Eschmann AG,  
Patentanwälte, Basel

⑤④ **Verfahren zur Herstellung von Bromfluormethan.**

⑤⑦ Die Herstellung von Bromfluormethan kann in guter Ausbeute bewirkt werden durch reduktive Entbromierung von Dibromfluormethan unter Verwendung eines Organozinnhydrids, beispielsweise Tri-n-butylzinnhydrid. Bromfluormethan ist ein wichtiges Reagens bei der Herstellung von Zwischenprodukten, Pharmazeutika und anderen Chemikalien.

## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft ein chemisches Verfahren zur Herstellung von Bromfluormethan.

Bromfluormethan ist ein wichtiges Reagens bei der Herstellung von Zwischenprodukten, Pharmazeutika und anderen Chemikalien.

Diese Verbindung wurde bisher durch drei grundlegende Methoden hergestellt. Bei der einen Methode wird Bromfluormethan aus Salzen der Fluoresigsäure unter Verwendung einer Reaktion vom Hunsdiecker-Typ hergestellt, wie von Haszeldine in *J.Chem. Soc.*, 1952, 4259-4268, und in USP 2 716 668 beschrieben wurde. Bei einer anderen Methode wird Bromfluormethan aus Dibromfluormethan durch reduktive Entbromierung mit einem Swarts-Reagens hergestellt, wie in der frühen Literatur von Swarts et al., *Bull. Acad. Roy. Belg.* 1910, 113, 23, beschrieben ist. Bei anderen Methoden wird Bromfluormethan aus Dihalogenmethan, beispielsweise Methylbromid, durch eine Halogen-Austauschreaktion oder aus Halogenmethan, beispielsweise Brommethan oder Fluormethan, durch Bromierung oder Fluorierung über einem Katalysator, wie Aluminiumoxid, hergestellt.

Diese früheren Methoden ergaben im allgemeinen geringe Ausbeuten oder umfassten die Verwendung gefährlicher Materialien.

Seyferth et al. beschreiben in *Journal of Organic Chemistry* 1963, 703-706, die zufällige Herstellung von Bromfluormethan durch schrittweise Reduktion von Tribromfluormethan unter Verwendung von Tri-n-butylzinnhydrid, obwohl keine unterstützenden Daten genannt werden. Jedoch sind die in dieser Abhandlung beschriebenen Reaktionsbedingungen derart, dass entweder kein Bromfluormethan entsteht oder das Produkt Mischungen von sowohl Bromfluormethan als auch Dibromfluormethan enthält. Seyferth et al. verwenden auch ein übliches Destillationssystem unter vermindertem Druck, und dies ergibt wahrscheinlich niedrige Ausbeuten an Bromfluormethan, da trotz der Erzielung einer 69%igen theoretischen Ausbeute an Dibromfluormethan aus Tribromfluormethan Seyferth et al. merkliche Mengen an Bromfluormethan nicht erhielten.

Weiterhin geben Seyferth et al. an, obwohl keine unterstützenden experimentellen Daten, speziell für die Reduktion von Tribromfluormethan gegeben sind, dass 0,02 Mol des Hydridreagens mit 0,04 Mol verschiedener Halogenmethane einschliesslich Tribromfluormethan bei 0°C während etwa 1 Stunde, unter Rühren bei dieser Temperatur während 10 Minuten und dann bei Raumtemperatur während weiterer 10 Minuten umgesetzt wurden. Die Beschreibung der Reaktionsprodukte ist zweifelhaft im Hinblick darauf, dass die Ausbeute an Dibromfluormethan grösser ist als das die Mengenverhältnisse der Reaktanten zulassen würden. Obwohl angegeben ist, dass etwas Bromfluormethan auch gebildet wird, ergibt der obige Widerspruch Zweifel an der Genauigkeit dieser Feststellung. Wenn jedoch ursprünglich gebildetes Dibromfluormethan tatsächlich weiter zu Bromfluormethan

reduziert wurde, selbst unter Anwendung der obigen offensichtlich milden Bedingungen, schliesst dies ein, dass es schwierig, wenn nicht unmöglich sein würde, die gleiche Technik, ausgehend von Dibromfluormethan, anzuwenden, um nur ein einziges Bromatom zu verschieben, um wertvolle Ausbeuten an Bromfluormethan zu ergeben. Seyferth et al. empfehlen daher nicht, dass die Organozinnhydrid-Reduktion von Dibromfluormethan ein besserer Weg zum Bromfluormethan wäre als die anderen oben erwähnten Methoden.

Es wurde nun gefunden, dass Bromfluormethan guter Qualität und Reinheit in guter Ausbeute und sehr viel wirksamer aus Dibromfluormethan hergestellt werden kann durch reduktive Debromierung von im wesentlichen reinem Dibromfluormethan unter Verwendung eines Organozinnhydrids, wie Tri-n-butylzinnhydrid.

Gemäss der vorliegenden Erfindung wird daher ein Verfahren zur Erzeugung von Bromfluormethan geschaffen, wobei im wesentlichen reines Dibromfluormethan der Reduktion mit einem Organozinnhydrid unterworfen wird.

Überraschenderweise wurde gefunden, dass die von Seyferth et al. beschriebene Neigung gewisser Polyhalogenmethane, mit einem solchen Hydridreagens zu weit zu reagieren, um doppelt enthalogenierte Produkte zu erhalten, durch sorgfältige Auswahl der Reaktionsbedingungen vermieden werden kann, so dass ein hochreines Produkt erhalten wird. Unter den bevorzugten Reaktionsbedingungen kann das Dibromfluormethan mit wenigstens einer im wesentlichen gleichen molaren Menge des Hydridreagens umgesetzt werden, so dass im wesentlichen vollständige Reaktion gesichert und Verunreinigung mit nichtumgesetztem Ausgangsmaterial minimiert wird. Der Ausdruck «eine im wesentlichen gleiche Molmenge» soll Mengenverhältnisse von Organozinnhydrid zu Dibromfluormethan zwischen 0,8:1 und 1,5:1, vorzugsweise 0,9:1 bis 1,3:1, bezeichnen.

Die gute Ausbeute und Reinheit der Reaktion kann durch Verwendung eines Rückflusskühlers, z.B. eines Kühlfingers oder Wasserkondensators, während der Reduktion erhöht werden, um nichtumgesetztes Dibromfluormethan dem Reaktionsgefäss zurückzuführen, wo ein Wasserkondensator verwendet wird, kann dieser mit einer oder mehreren Kältefallen verbunden sein, die Bromfluormethan zu kondensieren vermögen, z.B. ein Kühlfinger bei -196 bis -40°C. Dieses System ermöglicht es, etwas verdampfes Bromfluormethan während der Reduktion überzudestillieren, wodurch es aus dem Reaktionssystem entfernt wird. Jedoch wurde gefunden, dass Bromfluormethan, das während der Reduktion verdampft, selbst bei 0° bis 5°C etwas Dibromfluormethan-Reagens mitreisst. Infolgedessen wird, wenn ein Wasserkondensator hierbei verwendet wird, eine weitere Kühlfingerfalle, z.B. bei -35 bis +10°C, erwünschterweise vorgesehen, bevor die Falle von -196° bis -40°C irgendwelches verdampfbes Dibromfluormethan kondensiert und entfernt.

Jedoch kann es vorteilhaft sein, anstelle das Bromfluormethan während der Reduktion abdestillie-

ren zu lassen, einen Rückflusskühler, wie einen Kühlfinger, bei viel niedrigeren Temperaturen, z.B.  $-196^{\circ}$  bis  $-40^{\circ}\text{C}$ , zu verwenden, um sowohl Dibromfluormethan als auch Bromfluormethan zu der Reaktion zurückzuführen und die Destillation erst zu beginnen, wenn die Reduktion beendet ist. In diesem Falle wird der Rückflusskühlfinger klarerweise vor der Destillation zu entfernen sein.

Die Destillation wird vorzugsweise bei im wesentlichen Atmosphärendruck bei verhältnismässig niedrigen Temperaturen, beispielsweise  $0^{\circ}$  bis  $100^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $20$  bis  $45^{\circ}\text{C}$ , durchgeführt. Eine derartige Destillation ist langsam, sie findet beispielsweise während eines Zeitraums von  $0,5$  bis  $15$  Stunden, vorzugsweise  $2$  bis  $12$  Stunden, z.B.  $2$  bis  $6$  Stunden, statt.

Ein ständiger Fluss eines inerten Gases, wie Stickstoff, der durch die Reaktionsmischung während der Destillation fliesst, ist besonders vorteilhaft, um die Sammelgeschwindigkeit des Bromfluormethans zu erhöhen. Während der Destillation wird vorteilhafterweise eine Reihe von Kühlfingerfallen vorgesehen, wodurch nichtumgesetztes Dibromfluormethan in einer ersten Falle, beispielsweise bei  $-35^{\circ}$  bis  $+10^{\circ}\text{C}$ , gesammelt wird, z.B. eine Eis/Salzfaller, und das gewünschte Bromfluormethan wird in einer zweiten Falle oder Fallen bei viel niedrigeren Temperaturen, z.B. bei  $-196^{\circ}$  bis  $-40^{\circ}\text{C}$ , gesammelt.

Kühlfingerfallen, welche verwendet werden können, sind Trockeneis (festes Kohlendioxid)/Aceton (ca.  $-78^{\circ}\text{C}$ ), Trockeneis/Tetrachlorkohlenstoff (ca.  $-20^{\circ}\text{C}$ ), Trockeneis/Methanol (ca.  $-70^{\circ}\text{C}$ ) oder flüssiger Stickstoff (ca.  $-196^{\circ}\text{C}$ ). Trockeneis/Aceton (ca.  $-78^{\circ}\text{C}$ ) ist bevorzugt.

So kann im allgemeinen Dibromfluormethan mit dem Tri-n-butylzinnhydrid bei einer Temperatur im Bereich von  $-20$  bis  $+30^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $-5^{\circ}$  bis  $+10^{\circ}\text{C}$ , in Kontakt gebracht werden. Das Tri-n-butylzinnhydrid wird vorzugsweise langsam zugesetzt, z.B. über einen Zeitraum von  $0,5$  bis  $10$  Stunden. Das Reaktionsgefäss ist vorteilhaft mit entweder einem Wasserkondensator ( $5$  bis  $50^{\circ}\text{C}$ ) oder einem Kühlfinger ( $-196$  bis  $5^{\circ}\text{C}$ ), wie vorstehend beschrieben, ausgestattet.

Die Reaktion des Dibromfluormethans mit dem Tri-n-butylzinnhydrid ist exotherm und Kühlung ist gewöhnlich notwendig, um die Reaktionstemperatur bei Temperaturen in dem bevorzugten Bereich von  $-5^{\circ}$  bis  $+10^{\circ}\text{C}$  zu halten. Es wurde gefunden, dass die Anwesenheit eines freien Radikale-Initiators, wie  $\alpha,\alpha$ -Azoisobutyronitril, in der Reaktion und/oder zusätzliche Belichtung, beispielsweise aus einer Wolframlampe, die exotherme Wirkung mässigt. Ein derartiger freie Radikale-Initiator kann beispielsweise in dem Reaktionsgemisch bei einem Spiegel bis zu  $5$  Gew.-% in bezug auf das Dibromfluormethan, vorzugsweise  $0,1$  bis  $1$  Gew.-%, eingeschlossen sein.

Nach Zugabe des Tri-n-butylzinnhydrids wird das Gemisch vorteilhaft weiter bei  $-20^{\circ}$  bis  $+30^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $-5^{\circ}$  bis  $+10^{\circ}\text{C}$ , während  $0,1$  bis  $10$  Stunden geführt, um die Vollständigkeit der Reaktion sicherzustellen.

Zur Destillation wird der Rückflusskühlfinger,

falls verwendet, entfernt und das Gemisch auf zwischen  $0^{\circ}$  und  $100^{\circ}\text{C}$  erwärmt und weitere  $0,5$  bis  $15$  Stunden mit einem ständigen Fluss von Stickstoff, der durch den Reaktionskolben und die Falle(n) streicht, vorteilhaft mit einer Geschwindigkeit von  $5$  bis  $500$  ml/min gerührt. Während des Destillationszeitraums kann Bromfluormethan in einer Kühlfingerfalle bei  $-40^{\circ}$  bis  $-196^{\circ}\text{C}$  gesammelt werden. Eine zusätzliche Kühlfingerfalle bei  $-35^{\circ}$  bis  $+10^{\circ}\text{C}$  kann zwischen den Reaktionskolben und die Falle von  $-40^{\circ}$  bis  $-196^{\circ}\text{C}$  eingeschaltet werden, um die Menge an Dibromfluormethan, die in der zweiten Falle kondensiert, zu vermindern.

Die Erfindung wird durch die folgenden Beispiele näher erläutert. Dibromfluormethan wurde von Fluorochem Ltd., Old Glossop, Derbyshire, England, und Tri-n-butylzinnhydrid von Aldrich, Gillingham, Dorset, England, erhalten.

#### 20 Beispiel 1

##### Herstellung von Bromfluormethan aus Dibromfluormethan unter Verwendung von Tri-n-butylzinnhydrid

25 g Tri-n-butylzinnhydrid wurden aus einem Tropftrichter während  $2$  h zu  $16,5$  g kaltem ( $5^{\circ}\text{C}$ ) Dibromfluormethan gegeben, das in einem Kolben enthalten war, der mit einem Stickstoffeinlass und einem Kaltwasser-Rückflusskondensator zur Rückführung von verdampftem Dibromfluormethan in die Reaktion ausgestattet war. Die Reaktionsmischung wurde auf  $25^{\circ}$  bis  $30^{\circ}\text{C}$  erwärmt, und das Reaktionsgemisch wurde weitere  $2,5$  h gerührt, während ein ständiger Strom von Stickstoff durch den Reaktionskolben und die Fallen floss. Während der Zugabe- und der Erwärmungszeiten wurden  $8,7$  g Bromfluormethan von dem Rückflusskühler abgezogen und in einer Kühlfingerfalle von Trockeneis/Aceton (ca.  $-78^{\circ}\text{C}$ ) gesammelt. Eine Kühlfingerfalle von Eis/Salz ( $-10^{\circ}\text{C}$ ) war zwischen dem Reaktionskolben und der Falle von  $-78^{\circ}\text{C}$  vorhanden, um die Menge an Dibromfluormethan, das in der zweiten Falle kondensierte, zu vermindern. Das Produkt wurde durch seinen Siedepunkt ( $17^{\circ}\text{C}$ ) und NMR-Spektrum ( $10\%$  Vol/Vol  $\text{CDCl}_3$ ,  $\delta = 6,1$ , Dublett) identifiziert. GLC zeigte  $11\%$  Verunreinigungen ( $8\%$  Dibromfluormethan) und ergab eine korrigierte theoretische Ausbeute von  $79,8\%$ .

#### 50 Beispiel 2

##### Herstellung von Bromfluormethan aus Dibromfluormethan unter Verwendung von Tri-n-butylzinnhydrid

181,8 g ( $1,2$  Äquiv.) Tri-n-butylzinnhydrid wurden aus einem Tropftrichter während  $1$  h zu  $100$  g kaltem ( $5^{\circ}\text{C}$ ) Dibromfluormethan in einem Reaktionskolben zugesetzt, der mit einem Stickstoffeinlass und Trockeneis/Aceton-Kühlfinger-Rückflusskondensator (ca.  $-78^{\circ}\text{C}$ ) zur Rückführung von verdampftem Bromfluormethan und Dibromfluormethan zu der Reaktion ausgestattet war, wobei der Kühler zu einer Trockeneis/Aceton-Kühlfingerfalle ( $-78^{\circ}\text{C}$ ) zur

eventuellen Sammlung von Bromfluormethan führte. Die Temperatur wurde zwischen 0° und 5°C während der Zugabe gehalten. Das Gemisch wurde weiter während 1 h bei 0° bis 5°C gerührt. Der Trockeneis/Aceton-Kühlfinger-Rückflusskühler wurde entfernt, das Gemisch auf 40°C erwärmt und das Reaktionsgemisch wurde unter ständigem Fluss von Stickstoff durch den Reaktionskolben und die Fallen weitere 5 h gerührt. Während der Erwärmungs- und Rührperioden wurde Bromfluormethan (51 g) in der Trockeneis/Aceton-Kühlfingerfalle gesammelt. Das Produkt wurde durch seinen Siedepunkt (17°C) und NMR-Spektrum (10% Vol/Vol CDCl<sub>3</sub>,  $\delta = 6,1$ , Dublett) identifiziert. GLC zeigte 5,7% Verunreinigungen (0,8% Dibromfluormethan), was eine korrigierte theoretische Ausbeute von 81,8% ergab.

#### Beispiel 3

##### Herstellung von Bromfluormethan aus Dibromfluormethan unter Verwendung von Tri-n-butylzinnhydrid

Tri-n-butylzinnhydrid (1,89 kg, 1,2 Äquiv.) wurde aus einem Tropftrichter während 1 h 15 min zu kaltem (5°C) Dibromfluormethan (1,04 kg) in einem Reaktionskolben gegeben, der mit einem Stickstoffeinlass und Trockeneis/Aceton-Kühlfinger-Rückflusskühler (ca. -78°C) versehen war, um verdampftes Bromfluormethan und Dibromfluormethan der Reaktion zurückzuführen, wobei der Kühler zu einer Trockeneis/Aceton-Kühlfingerfalle (-78°C) führte zur eventuellen Sammlung von Bromfluormethan. Die Temperatur wurde während der Zugabe zwischen 0° und 5°C gehalten. Das Gemisch wurde weiter während 1 h bei 0 bis 5°C gerührt. Der Trockeneis/Aceton-Kühlfinger-Rückflusskühler wurde entfernt, das Gemisch auf 40°C erwärmt und mit einem ständigen Fluss von Stickstoff, der durch den Reaktionskolben und die Fallen floss, wurde das Reaktionsgemisch weitere 3 h gerührt. Das Reaktionsgemisch wurde dann auf 70°C erwärmt und dann weitere 9 h gerührt. Während des Erwärmens und des Rührens wurden 510 g Bromfluormethan in der Trockeneis/Aceton-Kühlfingerfalle gesammelt. Das Produkt wurde durch seinen Siedepunkt (17°C) und NMR-Spektrum (10% Vol/Vol CDCl<sub>3</sub>,  $\delta = 6,1$ , Dublett) identifiziert. GLC zeigte 4,7% Verunreinigungen (0,2% Dibromfluormethan), was eine korrigierte theoretische Ausbeute von 79,3% ergab.

#### Beispiel 4

##### Herstellung von Bromfluormethan aus Dibromfluormethan unter Verwendung von Tri-n-butylzinnhydrid

Tri-n-butylzinnhydrid (1,89 kg, 1,2 Äquiv.) wurde aus einem Tropftrichter während 1 h 15 min zu kaltem (5°C) Dibromfluormethan (1,04 kg) und  $\alpha, \alpha'$ -Azobutyronitril (AIBN) (1,04 g) in einem Reaktionskolben gegeben, der mit einem Stickstoffeinlass und einem Trockeneis/Aceton-Kühlfinger-Rückflusskühler (ca. -78°C) versehen war, um verdampftes

Bromfluormethan und Dibromfluormethan der Reaktion zurückzuführen, wobei der Kühler zu einer Trockeneis/Aceton-Kühlfingerfalle (-78°C) zur eventuellen Sammlung von Bromfluormethan führte. Die Temperatur wurde während der Zugabe zwischen 0 und 5°C gehalten. Das Gemisch wurde weiter während 1 h bei 0 bis 5°C gerührt. Der Trockeneis/Aceton-Kühlfinger-Rückflusskühler wurde entfernt, das Gemisch auf 40°C erwärmt und mit einem ständigen Fluss von Stickstoff, der durch den Reaktionskolben und die Fallen floss, wurde das Reaktionsgemisch weitere 3 h gerührt. Die Reaktionsmischung wurde dann auf 70°C erwärmt und weitere 9 h gerührt. Während der Erwärmungs- und Rührperioden wurden 470 g Bromfluormethan in der Trockeneis/Aceton-Kühlfingerfalle gesammelt. Das Produkt wurde durch seinen Siedepunkt (17°C) und NMR-Spektrum (10% Vol/Vol CDCl<sub>3</sub>,  $\delta = 6,1$ , Dublett) identifiziert. GLC zeigte 3,9% Verunreinigungen (0,7% Dibromfluormethan), was eine korrigierte theoretische Ausbeute von 72,1% ergab.

#### **Patentansprüche**

1. Verfahren zur Herstellung von Bromfluormethan, dadurch gekennzeichnet, dass im wesentlichen reines Dibromfluormethan der Reduktion mit einem Organozinnhydrid unterworfen wird.
2. Verfahren gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Organozinnhydrid ein Tri-n-butylzinnhydrid ist.
3. Verfahren gemäss Anspruch 1 oder Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Dibromfluormethan mit einer im wesentlichen gleichen Molmenge des Organozinnhydrids umgesetzt wird.
4. Verfahren gemäss Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass das Mengenverhältnis von Organozinnhydrid zu Dibromfluormethan 0,9:1 bis 1,3:1 beträgt.
5. Verfahren gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktionstemperatur im Bereich von -20° bis +30°C gehalten wird.
6. Verfahren gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion in Anwesenheit eines freie Radikale bildenden Initiators durchgeführt wird.
7. Verfahren gemäss Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass der freie Radikale bildende Initiator  $\alpha, \alpha'$ -Azobutyronitril ist.
8. Verfahren gemäss Anspruch 6 oder Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass der freie Radikale bildende Initiator in dem Reaktionsgemisch bei einem Spiegel bis zu 5 Gew.-% in bezug auf das Dibromfluormethan eingeschlossen ist.
9. Verfahren gemäss Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass der freie Radikale bildende Initiator bei einem Spiegel von 0,1 bis 1 Gew.-% in bezug auf das Dibromfluormethan eingeschlossen ist.
10. Verfahren gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion in Anwesenheit zusätzlicher Belichtung bewirkt wird.
11. Verfahren gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Re-

aktion in einem Gefäss durchgeführt wird, das mit einem Rückflusskühler versehen ist, der dazu dient, irgendwelches verdampfende Dibromfluormethan zu kondensieren und zu dem Reaktionsgemisch während der Fortführung der Reaktion zurückzuführen. 5

12. Verfahren gemäss Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass der Rückflusskühler auch dazu dient, irgendwelches verdampfende Bromfluormethan zu kondensieren und zurückzuführen. 10

13. Verfahren gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass Bromfluormethan und nichtumgesetztes Dibromfluormethan aus dem Reaktionsgemisch abdestilliert werden und vor der Kondensation und Sammlung des Bromfluormethans nicht umgesetztes Dibromfluormethan durch Kondensation bei einer Temperatur im Bereich von  $-35^{\circ}$  bis  $+10^{\circ}\text{C}$  entfernt wird. 15

14. Verfahren gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Destillation nach Vervollständigung der Reaktion begonnen wird. 20

15. Verfahren gemäss Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass ein inertes Gas durch das Reaktionsgemisch fliessen gelassen wird, um die Geschwindigkeit der Sammlung von Bromfluormethan zu erhöhen. 25

30

35

40

45

50

55

60

65

5