

(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
17. Mai 2001 (17.05.2001)

PCT

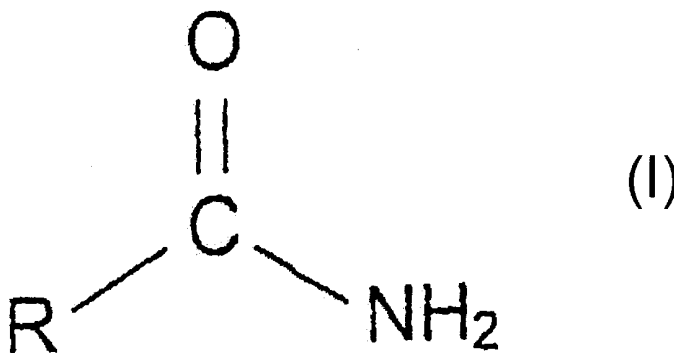
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/34560 A3

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: C07C 227/12, 229/16 (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): SKW TROSTBERG AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Dr.-Albert-Frank-Strasse 32, 83308 Trostberg (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/11092 (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GRÖGER, Harald [DE/DE]; Uferstrasse 25, 83308 Trostberg (DE). HAMMER, Benedikt [DE/DE]; Am Anger 24, 83342 Tacherting (DE).
- (22) Internationales Anmeldedatum: 9. November 2000 (09.11.2000)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch (74) Anwälte: WEICKMANN, H. usw.; Postfach 860 820, D-81635 München (DE).
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,
- (30) Angaben zur Priorität: 199 54 194.9 11. November 1999 (11.11.1999) DE

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING IMINODICARBOXYLIC ACIDS

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON IMINODICARBONSÄUREN



(57) Abstract: The invention relates to a method for producing iminodicarboxylic acids by amidocarbonylating compounds of formula (I), wherein R = H, NH₂, C₁₋₂₈-alkyl, C₆₋₁₂ aryl with carbon monoxide in the acidic medium and in the presence of a catalytic palladium complex and of an aldehyde as well as of the terminating hydrolytic cleavage of the N-acyl group. The inventive method is characterized in that the amidocarbonylation is carried out in a hydrous medium. Formamide, acetamide or urea are used as a particularly suitable starting material. Inorganic Pd(II) salts, such as palladium acetate or palladium chloride, or heterogeneous Pd catalysts are mainly used in mixtures containing a mineral acid and in quantities ranging from 0.01 to 0.25 mol %, whereby the catalytic system should contain, in particular, hydrobromic acid or hydrochloric acid. The invention also provides that the reaction is carried out in the presence of a maximum of 35 mol % of a halogenide salt.

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von Iminodicarbonsäuren durch Amidocarbonylierung von Verbindungen der Formel (I), worin R = H, NH₂, C₁₋₂₈-Alkyl, C₆₋₁₂-Aryl mit Kohlenmonoxid im sauren Milieu in Gegenwart eines katalytischen Palladiumkomplexes und eines Aldehyds sowie der abschließenden hydrolytischen Abspaltung der N-Acylgruppe, das dadurch gekennzeichnet ist, dass die Amidocarbonylierung in einem wasserhaltigen Medium durchgeführt wird. Als besonders geeignetes Ausgangsmaterial werden Formamid, Acetamid oder Harnstoff eingesetzt. Anorganische Pd(II)-Salze, wie Palladiumacetat oder -chlorid, oder heterogene Pd-Katalysatoren werden vor allem in Mischungen mit einer Mineralsäure und in Mengen von 0,01 bis 0,25 mol-% verwendet, wobei das katalytische System insbesondere Brom- oder Chlorwasserstoffsäure enthalten sollte. Ebenfalls vorgesehen ist die Umsetzung in Anwesenheit von max. 35 mol-% eines Halogenidsalzes.

WO 01/34560 A3



CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

- (84) **Bestimmungsstaaten** (*regional*): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen

Recherchenberichts: 13. Dezember 2001

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 00/11092

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C07C227/12 C07C229/16				
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) IPC 7 C07C				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data, PAJ				
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
X	WO 98 35930 A (MONSANTO CO (US)) 20 August 1998 (1998-08-20) page 12, line 10 - line 38 page 15, line 21 -page 18, line 10 page 26, line 10 - line 16 -----	1-17		
X	WO 98 04518 A (BOGDANOVIC SANDRA ;GEISSLER HOLGER (DE); HOECHST RES & TECH GMBH &) 5 February 1998 (1998-02-05) claims; examples -----	1-17		
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.				
<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.				
° Special categories of cited documents :				
<table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 50%; border: none; vertical-align: top;"> *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed </td> <td style="width: 50%; border: none; vertical-align: top;"> *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *&* document member of the same patent family </td> </tr> </table>			*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *&* document member of the same patent family
A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *&* document member of the same patent family			
Date of the actual completion of the international search <p style="text-align: center; font-size: 1.2em;">31 July 2001</p>	Date of mailing of the international search report <p style="text-align: center; font-size: 1.2em;">08/08/2001</p>			
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer <p style="text-align: center; font-size: 1.2em;">Pauwels, G</p>			

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/11092

Patent document cited in search report	A	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9835930	A	20-08-1998	AU 6326498	08-09-1998
			BR 9806266	17-10-2000
			CN 1239473	22-12-1999
			EP 0973719	26-01-2000
			HU 0002032	28-10-2000
			NO 992245	12-08-1999
			US 6153753	28-11-2000
			ZA 9801220	17-08-1998
WO 9804518	A	05-02-1998	DE 19629717	12-02-1998
			AU 3768097	20-02-1998
			CN 1228078	08-09-1999
			CZ 9900240	14-04-1999
			EP 0918745	02-06-1999
			NO 990295	22-01-1999
			US 2001007911	12-07-2001
			ZA 9706596	25-01-1999

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In nationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/11092

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
 IPK 7 C07C227/12 C07C229/16

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
 IPK 7 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, CHEM ABS Data, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 98 35930 A (MONSANTO CO (US)) 20. August 1998 (1998-08-20) Seite 12, Zeile 10 - Zeile 38 Seite 15, Zeile 21 - Seite 18, Zeile 10 Seite 26, Zeile 10 - Zeile 16 ---	1-17
X	WO 98 04518 A (BOGDANOVIC SANDRA ; GEISSLER HOLGER (DE); HOECHST RES & TECH GMBH &) 5. Februar 1998 (1998-02-05) Ansprüche; Beispiele -----	1-17

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

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 älteres Dokument, 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 anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

31. Juli 2001

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

08/08/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
 Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Pauwels, G

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

In internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/11092

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9835930 A	20-08-1998	AU 6326498 A	08-09-1998
		BR 9806266 A	17-10-2000
		CN 1239473 T	22-12-1999
		EP 0973719 A	26-01-2000
		HU 0002032 A	28-10-2000
		NO 992245 A	12-08-1999
		US 6153753 A	28-11-2000
		ZA 9801220 A	17-08-1998

WO 9804518 A	05-02-1998	DE 19629717 C	12-02-1998
		AU 3768097 A	20-02-1998
		CN 1228078 A	08-09-1999
		CZ 9900240 A	14-04-1999
		EP 0918745 A	02-06-1999
		NO 990295 A	22-01-1999
		US 2001007911 A	12-07-2001
		ZA 9706596 A	25-01-1999
