

(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
24. Februar 2005 (24.02.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2005/016512 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **B01J 19/00**,
F28D 9/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2004/008074

(22) Internationales Anmeldedatum:
20. Juli 2004 (20.07.2004)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10335451.4 2. August 2003 (02.08.2003) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): **BAYER MATERIALSCIENCE AG** [DE/DE];
51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **KÜPPER, Kurt-Man-
fred** [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Str. 56, 51375 Lev-
erkusen (DE). **WILMES, Oswald** [DE/DE]; Edmund-ter-
Meer-Str. 28, 51061 Köln (DE). **STEENBECK, Hartmut**
[DE/DE]; Trollblumenweg 13, 50765 Köln (DE). **NAGEL,
Almut** [DE/DE]; In der Felderhütten 67, 51371 Leverkusen
(DE).

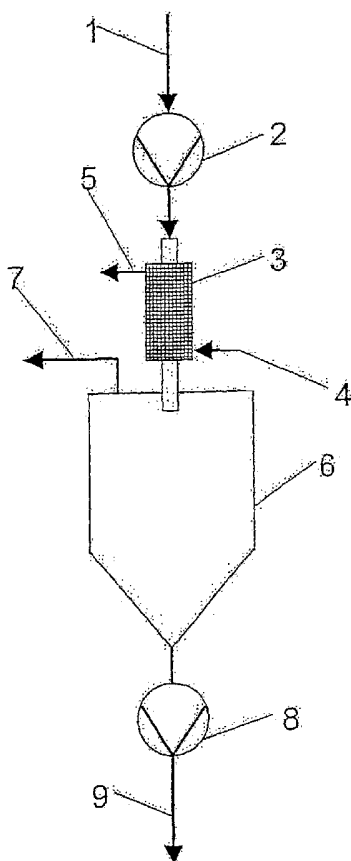
(74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER MATERI-
ALSCIENCE AG**; Law and Patents, Patents and
Licensing, 51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,
AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR THE ELIMINATION OF VOLATILE COMPOUNDS FROM MIXTURES BY MEANS OF A MICRO
EVAPORATOR

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR ENTFERNUNG VON FLÜCHTIGEN VERBINDUNGEN AUS STOFFGEMISCHEN
MITTELS MIKROVERDAMPFER



(57) Abstract: The invention relates to a method for eliminating at least one volatile compound from a reactive or nonreactive mixture with the aid of at least one micro evaporator. Said micro evaporator comprises channels for directing the mixture, which have a hydraulic diameter of 5 to 1000 μm and a minimum specific evaporation surface of $10^3 \text{ m}^2/\text{m}^3$.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung beschreibt ein Verfahren zur Entfernung von wenigstens einer flüchtigen Verbindung aus einem reaktiven oder nichtreaktiven Stoffgemisch mit Hilfe mindestens eines Mikroverdampfers, wobei der Mikroverdampfer Kanäle für die Führung des Stoffgemisches mit einem hydraulischen Durchmesser von 5 bis 1000 μm und eine spezifische Verdampferfläche von mindestens $10^3 \text{ m}^2/\text{m}^3$ aufweist.

WO 2005/016512 A1



CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, 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, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU,

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.

Verfahren zur Entfernung von flüchtigen Verbindungen aus Stoffgemischen mittels Mikroverdampfer

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Entfernung von flüchtigen Verbindungen aus reaktiven oder nichtreaktiven Stoffgemischen.

5 Üblicherweise werden in der Technik für die Verdampfung von flüchtigen Stoffen aus nichtreaktiven, temperatursensitiven Stoffgemischen Dünnschichtverdampfer eingesetzt. Dazu gehören z.B. Wendelrohrverdampfer, Fallfilmverdampfer, Zentrifugalverdampfer. Bei Wendelrohrverdampfern wird das Produkt oft überhitzt, insbesondere wenn der Verdampfer über eine Druckhaltung am Austritt betrieben wird. Beim Fallfilm- oder Zentrifugalverdampfer werden relativ große Film-
10 dicken von bis zu 1 mm bzw. bis zu 0,1 mm erreicht, die den Stoff- und Wärmetransport ungünstig beeinflussen und daher eine größere Verweilzeit erfordern.

Aus M. K. Drost, Ch. Call, J. Cuta, R. Wegeng, Microchannel combustor/evaporator thermal processes, Microscale Thermophysical Engineering, 1:321-332, 1997 ist ein mit einer keramischen Verbrennungskammer gekoppelter mikrostrukturierter Verdampfer, welcher den Wärmeübergang
15 von den Verbrennungsprodukten auf die Oberflächen der Verbrennungskammer verstärkt, bekannt. Mikrostrukturierte Verdampfer zum Verdampfen flüchtiger Verbindungen aus Mehrstoffgemischen mit einer Verdampfungsleistung im Bereich von mehreren kg/h oder mehr sind hierin nicht beschrieben.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zu Grunde, flüchtige Stoffe aus Stoffgemischen, welche unter
20 Betriebsbedingungen niederviskos sind, unter schonenden Bedingungen zu entfernen, d.h. bei möglichst niedriger Temperatur, kurzer Verweilzeit und enger Verweilzeitverteilung.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Entfernung von wenigstens einer flüchtigen Verbindung aus einem reaktiven oder nichtreaktiven Stoffgemisch mit Hilfe mindestens eines Mikroverdampfers, wobei der Mikroverdampfer Kanäle für die Führung des Stoffgemisches mit einem
25 hydraulischen Durchmesser von 5 bis 1000 μm und eine spezifische Verdampferfläche von mindestens $10^3 \text{ m}^2/\text{m}^3$ aufweist.

In einer bevorzugten Ausführungsform weisen die Kanäle des Mikroverdampfers einen hydraulischen Durchmesser von 30 bis 500 μm auf.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform weisen auch die Kanäle für die Führung des
30 Heizmediums einen hydraulischen Durchmesser von 5 bis 1000 μm , besonders bevorzugt von 30 bis 500 μm , auf.

Die Kanäle des Mikroverdampfers für die Durchleitung des Stoffgemisches und des Heizmediums können beliebige geometrische Formen aufweisen. Der Querschnitt der Kanäle kann z.B. rund, halbrund, eckig, insbesondere rechteckig oder dreieckig, sein. Unabhängig von der Geometrie der Kanäle wird im Sinne der vorliegenden Erfindung der hydraulische Durchmesser als kennzeichnende Größe verwendet. Der hydraulische Durchmesser ist gegeben durch die vierfache Querschnittsfläche (F) dividiert durch den Umfang (U) des Querschnitts:

$$\text{Hydraulischer Durchmesser} = 4 F/U$$

Aufgrund der sehr kleinen Abmessungen der Strömungskanäle erfolgen in Mikrostrukturverdampfern die Wärme- und Stoffübergänge schneller und effizienter als in konventionellen Verdampfern wie Fallfilmverdampfer o.dgl. Ein Mikroverdampfer im Sinne der vorliegenden Erfindung besitzt eine spezifische Verdampferfläche von mindestens $10^3 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Nicht-mikrostrukturierte Verdampfer, z.B. Fallfilmverdampfer, besitzen üblicherweise eine spezifische Verdampferfläche von weniger als $0,5 \cdot 10^3 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Dabei ist die spezifische Verdampferfläche gegeben durch das Verhältnis von Wärmeaustauschfläche zu nutzbarem Volumen des Verdampfers. Das nutzbare Volumen wiederum ist bei konventionellen, d.h. nicht-mikrostrukturierten, und mikrostrukturierten Verdampfern gegeben durch das Gesamtvolumen vermindert um das Volumen der Einbauten.

Nach dem erfindungsgemäßen Verfahren tritt das Stoffgemisch flüssig in den Mikrostrukturverdampfer ein. Über die Zufuhr von Wärme wird die Verdampfung von flüchtigen Komponenten ermöglicht und das Stoffgemisch tritt am Ausgang des Mikroverdampfers zweiphasig als Gas/Flüssig-Gemisch aus. Die Verdampfung erfolgt dabei aufgrund der geringen Verweilzeit schonend, d.h. mit einer möglichst geringen Überhitzung sieden die leichter flüchtigen Stoffe im Stoffgemisch. Leicht flüchtige Komponenten im Sinne der vorliegenden Erfindung zeichnen sich dadurch aus, dass sie unter den Betriebsbedingungen im Mikroverdampfer oder am Austritt des Mikroverdampfers teilweise oder vollständig verdampfen.

In den Kanälen des Mikrostrukturverdampfers entsteht bei der Verdampfung eine Zweiphasenströmung bestehend aus Dampfblasen, deren maximale Größe durch die Kanaldimensionen begrenzt ist. Hierdurch wird eine hohe Phasengrenzfläche erzeugt, die eine schnelle Überführung der flüchtigen Stoffe in die Gasphase ermöglicht und damit eine hohe Verdampfungsrate bei kurzen Verweilzeiten gewährleistet. Weiterhin sorgt die in den Kanälen entstehende Blasenströmung durch eine Wirbelbildung innerhalb der sie umgebenden Flüssigphase für einen erhöhten Stofftransport an die Phasengrenzfläche und für einen erhöhten Wärmetransport von der Kanalwand in die Flüssigphase.

Typische Viskositäten der Stoffgemische, die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren behandelt werden, betragen bei Betriebstemperaturen von -100 bis 500°C, vorzugsweise von 0 bis 400°C, besonders bevorzugt von 50 bis 250°C maximal 5 Pa·s, bevorzugt maximal 100 mPa·s,.

5 Bevorzugt beträgt die Temperatur bei dem erfindungsgemäßen Verfahren -100 bis 500°C, bevorzugt 0 bis 400°C, besonders bevorzugt 50 bis 250°C. Der Druck beträgt vorzugsweise 0 bis 100 bar, besonders bevorzugt 0 bis 10 bar, ganz besonders bevorzugt 0 bis 1 bar. Die Verweilzeit beträgt bevorzugt 0,001 bis 60 s, besonders bevorzugt 0,01 bis 10 s.

10 Ein Mikroverdampfer, wie er nach dem erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzt werden kann, ist beispielsweise schichtweise aus dünnen Metall-Platten aufgebaut, wobei jede Platte eine Vielzahl von parallelen Kanälen aufweist. Die Platten sind beispielsweise kreuzweise zueinander angeordnet, so dass die Kanäle einer Platte zu den Kanälen der jeweils darunter und/oder darüber befindlichen Platte senkrecht stehen. Entsprechend werden das Wärmedium und das Stoffgemisch im Kreuzstromprinzip durch den Mikroverdampfer geleitet: Jede zweite Schicht ist von dem Heizmedium bzw. von dem Stoffgemisch durchströmt. Die Platten besitzen z.B. eine Dicke
15 von 100 bis 1000 µm. Die Kanäle haben z.B. eine Länge von 0,5 bis 20 cm, vorzugsweise von 1 bis 10 cm, und einen bevorzugten hydraulischen Durchmesser von 5 bis 1000 µm, besonders bevorzugt von 30 bis 500 µm.

Als Heizmedium können die üblichen Heizmedien wie z.B. Wasserdampf, Druckwasser oder Wärmeträgeröle eingesetzt werden.

20 Der Mikrostrukturverdampfer kann aus einem beliebigen metallischen Werkstoff gefertigt sein, z.B. Stahl, Edelstahl, Titan, Hastelloy, Inconel oder anderen metallischen Legierungen.

Das Verfahren kann als zusätzlicher Verfahrensschritt in einem kontinuierlichen Verfahren integriert werden. Es kann auch als zusätzlicher Verfahrensschritt in einem batchweise ausgeführtem Verfahren durch wiederholtes Umpumpen eines Kreislaufstromes zur Aufkonzentrierung des
25 gewünschten Produktes oder auch zur Verschiebung eines chemischen Gleichgewichtes eingesetzt werden. Das Verfahren kann beispielsweise als Verdampfungsschritt in einen beliebigen Prozess der chemischen oder pharmazeutischen Technik oder der Lebensmitteltechnik integriert werden.

Das Verfahren kann einstufig oder mehrstufig durch mehrfache Hintereinanderschaltung von Mikrostrukturverdampfern ausgeführt werden. Bei einem mehrstufigen Verfahren kann die Ver-
30 dampfung auch auf verschiedenen Druck- und Temperaturniveaus durchgeführt werden.

Anwendung findet das erfindungsgemäße Verfahren bei reaktiven oder nichtreaktiven Stoffgemischen. Unter reaktiven Stoffgemischen im Sinne der vorliegenden Erfindung sind Stoffgemische zu verstehen, die Komponenten enthalten, welche miteinander reagieren. Leicht flüchtige Komponenten solcher Stoffgemische können z.B. niedermolekulare Nebenprodukte der Reaktion sein oder Lösungsmittel, in denen die Reaktionskomponenten gelöst sind. Unter nichtreaktiven Stoffgemischen im Sinne der vorliegenden Erfindung sind dagegen Stoffgemische zu verstehen, deren Komponenten nicht miteinander reagieren. Bei den leicht flüchtigen Komponenten, welche in solchen Stoffgemischen enthalten sind, kann es sich ebenfalls z.B. um Lösungsmittel oder niedermolekulare Nebenprodukte handeln.

Als Beispiele für Verfahren zum Verdampfen von flüchtigen Komponenten aus reaktiven Stoffgemischen seien genannt: Abtrennung von Wasser oder anderer niedermolekularer Stoffe bei Polykondensationsreaktionen, z.B. bei der Herstellung von Estern, Oligoestern, Polyestern oder Polyamiden; Phenolabtrennung bei der Kondensation von Diphenylcarbonat mit aromatischen Bisphenolen zu Oligomeren oder Polymeren; Reaktionen mit Bildung einer abtrennbaren Komponente mit hohem Dampfdruck (beispielsweise HCl-Abtrennung bei der Umsetzung von Phosgen mit Alkoholen zu Dialkylcarbonaten); Pyrolysereaktionen, bei denen unter Pyrolysebedingungen verdampfbare Wertprodukte entstehen, z.B. Rückspaltung von Polyestern in makrocyclische Mono- oder Dilactone; Pyrolysereaktionen, bei denen unter Pyrolysebedingungen eine reaktive gasförmige Komponente vom Wertstoff entsteht und abgetrennt wird, z.B. Abtrennung von gasförmigem Alkohol von einem Isocyanat, welches bei der Pyrolyse von Urethanen als Kondensat anfällt.

Als Beispiele für Verfahren zum Verdampfen von flüchtigen Komponenten aus nichtreaktiven Stoffgemischen seien genannt: Abtrennung von flüchtigen Monomeren (Diisocyanate) aus Polyisocyanatharzen; schonende Lösemittelentfernung aus Stoffgemischen mit temperaturempfindlichen Substanzen (insbesondere in der Feinchemie); Lösemittel- und Monomerabtrennung aus Polymerlösungen; Abtrennung von flüchtigen Wertstoffen aus z.B. Destillationsrückständen; Abtrennen von Ethanol aus alkoholischen Getränken. Daneben sind Anwendungen in der Kältetechnik möglich.

Vorteilhaft an dem erfindungsgemäßen Verfahren ist, dass aufgrund der kurzen Verweilzeiten und daher niedrigen Temperaturbelastungen in dem Mikroverdampfer eine Zersetzung von temperaturempfindlichen Produkten in diesem Aufbereitungsschritt im Vergleich zu herkömmlichen Verdampfern vermindert oder gar vermieden wird. Damit werden eine höhere Ausbeute und höhere Produktqualität gewährleistet. Außerdem wird durch die geometrisch bedingte Bildung kleiner Blasen das Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnis erhöht, weshalb eine sehr effiziente Verdampfung

möglich ist. Dies ist beispielsweise bei der Entfernung von Restlösungsmitteln oder Restmonomeren aus Polymeren von besonderer Bedeutung.

Der Einsatz von Mikroverdampfern für die Verdampfung von flüchtigen Komponenten ist auch bei reaktiven Stoffgemischen von Vorteil, da das Reaktionsgleichgewicht hin zu dem gewünschten Produkt verschoben und damit die Ausbeute erhöht werden kann.

Platzbedarf und Anschaffungskosten für die Durchführung des Verfahrens sind wegen der kompakten Bauweise von Mikrostrukturverdampfers gering.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann insbesondere eingesetzt werden zur Abtrennung monomerer Diisocyanate von Polyisocyanaten, die beispielsweise in Polyurethan-Beschichtungssystemen zur Anwendung gelangen. Diisocyanate sind üblicherweise als giftige Arbeitsstoffe eingestuft und weisen zum Teil einen erheblichen Dampfdruck auf. Aus arbeitshygienischen Gründen dürfen sie daher in Lacksystemen nicht in monomerer Form vorliegen. Sie müssen zuvor mit Hilfe geeigneter Modifizierungsreaktionen in höhermolekulare, physiologisch unbedenkliche Polyisocyanate umgewandelt werden. Diese Umwandlung erfolgt zumeist mit einem Diisocyanat-Überschuss. Reste von nicht umgesetztem monomerem Diisocyanat werden durch Destillation aus der Reaktionsmischung entfernt.

Wesentlich ist hierbei, dass nach der Destillation im Polyisocyanat ein möglichst geringer Restgehalt an monomerem, d.h. giftigem, Diisocyanat enthalten ist. Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren gelingt die Abtrennung der monomeren Diisocyanate bis auf die gewünschten Restgehalte von unter 0,5 %, in bestimmten Fällen auch bis unter 0,1 %. Vorteilhaft ist hierbei, dass die Polyisocyanate durch die geringe Verweilzeit und enge Verweilzeitverteilung nur eine relativ geringe thermische Belastung erfahren. Damit werden Nebenreaktionen der Isocyanatgruppen während der Destillation vermieden und zusätzlich besonders farbheile Polyisocyanate erhalten.

Die Erfindung wird nachfolgend anhand der Figuren näher erläutert. Es zeigen:

Figur 1 ein Fließdiagramm einer ersten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens zum Verdampfen von flüchtigen Verbindungen aus einem nichtreaktiven Stoffgemisch

Figur 2 ein Fließdiagramm einer zweiten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens zum Verdampfen von flüchtigen Verbindungen aus einem reaktiven Stoffgemisch

In Figur 1 ist ein Fließdiagramm zum Verdampfen von flüchtigen Komponenten aus einem nicht-reaktiven Stoffgemisch dargestellt. Das flüssige Stoffgemisch wird über einen Eduktzulauf 1 mit einer Pumpe 2 in den Mikroverdampfer 3 gefördert. Der Mikrostrukturverdampfer 3 besteht aus einer Vielzahl von parallelen Kanälen, welche in Schichten angeordnet sind. In jeder 2. Schicht des Mikroverdampfers 3 wird das Stoffgemisch geführt. In den dazwischenliegenden Schichten sind ebenfalls eine Vielzahl von parallelen Kanälen angeordnet, in denen das Heizmedium geführt wird. Die Kanäle für das Edukt und das Heizmedium können z.B. parallel zueinander oder senkrecht zueinander verlaufen. Das Heizmedium wird aus einem hier nicht gezeigten Heizmediumkreislauf über einen Einlass 4 eingeführt und über einen Auslass 5 abgeführt. Aus dem Mikroverdampfer 3 strömt das Stoffgemisch als Gas/Flüssig-Gemisch in einen Gasabtrenner 6, aus dem die flüchtigen Stoffe gasförmig abgezogen werden 7. Aus diesem Gasabscheider 6 wird das Produkt 9 über eine Pumpe 8 aus der Anlage geführt.

Figur 2 zeigt ein Fließdiagramm zur Verdampfung flüchtiger Bestandteile aus reaktiven Stoffgemischen. Über einen Eduktzulauf 1 wird das flüssige Stoffgemisch (Edukt) mit einer Pumpe 2 in den Verdampfer gefördert. Der Mikrostrukturverdampfer 3 ist beispielsweise ähnlich wie in Figur 1 beschrieben aufgebaut. Das Heizmedium wird analog zu Figur 1 aus einem hier nicht gezeigten Heizmediumkreislauf eingeführt 4 und abgeführt 5. Das Stoffgemisch strömt als Gas/Flüssig-Gemisch aus dem Mikroverdampfer 3 in einen Gasabscheider 6, aus dem die flüchtigen Stoffe gasförmig abgezogen werden 7. Aus diesem Gasabtrenner 6 wird das Produkt 9 über eine Pumpe 8 aus der Anlage geführt. Gegebenenfalls wird ein Teil dieses Produktstroms im Kreislauf 10 über einen Reaktor 11 geführt und über die Pumpe 2 wieder in den Mikroverdampfer 3 gegeben.

Beispiele

Es wurde ein Rohprodukt wie nachfolgend beschreiben hergestellt, aus dem durch Verdampfen das Diisocyanat Desmodur W[®] (H₁₂-MDI, Handelsprodukt der Fa. Bayer, NCO-Gehalt 32,1 Gew.-%) abgetrennt worden ist:

- 5 In einem Rührbehälter wurden 1586,0 kg Desmodur W[®] unter Stickstoffatmosphäre vorgelegt. Unter Rühren wurde auf 60° C erhitzt und nacheinander 21,5 kg eines auf 1,1,1-Tri-methylol-propan gestarteten Propylenoxid-Polyethers der OH-Zahl 385, 92,6 kg eines auf Bisphenol A gestarteten Propylenoxid-Polyethers der OH-Zahl 200 und 1470,0 kg eines auf 1,1,1-Tri-methylol-propan gestarteten Propylenoxid/Ethylenoxid-Polyethers der OH-Zahl 28 (Verhältnis Propylenoxid :
- 10 Ethylenoxid = 82,5 : 17,5) temperaturkontrolliert im Bereich 60 – 80°C zugefügt. Danach wurde auf 100°C erhitzt und bis zu einem NCO-Gehalt von 14,1 Gew.-% umgesetzt. Das Rohprodukt, das noch ca. 40 Gew.-% Desmodur W[®] enthielt, wurde auf 50°C abgekühlt.

Beispiel 1

- Das Rohprodukt wurde mit einer Temperatur von 60°C und einem Eintrag von 60 kg/h dem mit
- 15 30 bar Dampf (230°C) beheizten Mikrostrukturverdampfer 3 mit nachgeschaltetem Umlenkabscheider 6 zugeführt. Der Mikrostrukturverdampfer 3 hatte die folgenden Kanalabmessungen: Länge x Breite x Höhe: 40 mm x 200 µm x 100 µm. Der hydraulische Durchmesser betrug 133 µm. Die Wärmeübertragungsfläche betrug 0,135 m², die spezifische Verdampferfläche 2·10⁴ m²/m³. Die Verweilzeit in dem Mikrostrukturverdampfer 3 betrug ca. 0,3 s. Über den
- 20 Umlenkabscheider 6 wurden in dieser Stufe bei einem Druck von 0,8 mbar 21 kg/h Destillat (Desmodur W[®]) abgetrennt. Das auf diese Weise auf einen Desmodur W[®]-Gehalt von 7,8 Gew.-% aufkonzentrierte Rohprodukt wurde anschließend in einen auf 230°C beheizten Dünnschichtverdampfer (Verdampferfläche 1 m²) überführt, der bei einem Druck von 0,5 mbar betrieben wurde. Am Austrag des Dünnschichtverdampfers wurde ein Polyisocyanatharz mit einem NCO-
- 25 Gehalt von 2,55 Gew.-% erhalten, das nur noch einen Restgehalt von 0,12 Gew.-% des eingesetzten Desmodur W[®] enthielt.

Beispiel 2 (Vergleichsbeispiel)

- Das Rohprodukt wurde mit einer Temperatur von 60°C über eine mit 6 bar Dampf (160°C) begleitbeheizte Leitung mit einem Eintrag von 30 kg/h einem Fallfilmverdampfer mit nach-
- 30 geschaltetem Umlenkabscheider zugeführt. Die Wärmeübertragungsfläche betrug 0,314 m², die spezifische Verdampferfläche betrug 1,57·10² m²/m³. Verdampfer und Abscheider waren mittels

30 bar Dampf auf 230°C beheizt. Die Destillation erfolgte bei 0,8 mbar. In dieser Stufe wurde eine Destillatmenge von 9 kg/h Desmodur W[®] erhalten.

5 Das auf diese Weise auf einen Desmodur W[®]-Gehalt von 14,4 Gew.-% aufkonzentrierte Rohprodukt wurde anschließend analog Beispiel 1 in einen auf 230°C beheizten Dünnschichtverdampfer (Verdampferfläche 1 m²) überführt, der bei einem Druck von 0,5 mbar betrieben wurde. Am Ablauf des Dünnschichtverdampfers wurde ein Polyisocyanatharz mit einem NCO-Gehalt von 2,90 Gew.-% erhalten, das einen Restgehalt von 1,25 Gew.-% des eingesetzten Desmodur W[®] enthielt.

10 Der Vergleich zwischen den Beispielen 1 und 2 zeigt, dass unter Einsatz des Mikrostrukturverdampfers das Desmodur W[®] deutlich effizienter abtrennbar ist als mit dem Fallfilmverdampfer.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Entfernung von wenigstens einer flüchtigen Verbindung aus einem reaktiven oder nichtreaktiven Stoffgemisch mit Hilfe mindestens eines Mikroverdampfers, wobei der Mikroverdampfer Kanäle für die Führung des Stoffgemisches mit einem hydraulischen Durchmesser von 5 bis 1000 μm und eine spezifische Verdampferfläche von mindestens $10^3 \text{ m}^2/\text{m}^3$ aufweist.
5
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Kanäle des Mikroverdampfers einen hydraulischen Durchmesser von 30 bis 500 μm aufweisen.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Mikroverdampfer Kanäle für die Führung des Heizmediums mit einem hydraulischen Durchmesser von 5 bis 1000 μm , bevorzugt von 30 bis 500 μm , aufweist.
10
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-3, dadurch gekennzeichnet, dass die Temperatur – 100 bis 500 $^{\circ}\text{C}$, bevorzugt 0 bis 400 $^{\circ}\text{C}$, besonders bevorzugt 50 bis 250 $^{\circ}\text{C}$, beträgt.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-4, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck 0 bis 100 bar, bevorzugt 0 bis 10 bar, besonders bevorzugt 0 bis 1 bar, beträgt.
15
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-5, dadurch gekennzeichnet, dass die Verweilzeit 0,001 bis 60 s, bevorzugt 0,01 bis 10 s, beträgt.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-6, dadurch gekennzeichnet, dass wenigstens ein monomeres Diisocyanat als flüchtige Verbindung aus einem Stoffgemisch, wenigstens enthaltend ein Polyisocyanat, entfernt wird.
20

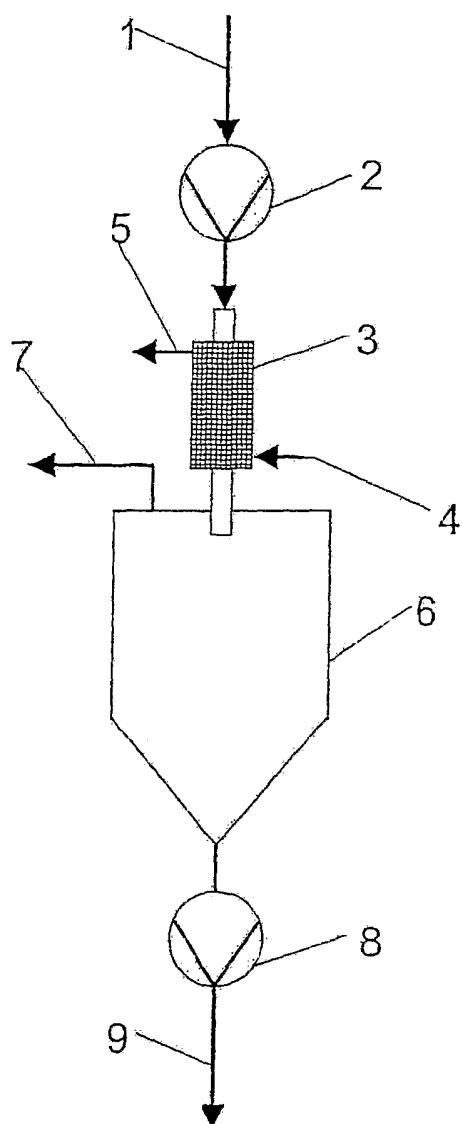


Fig. 1

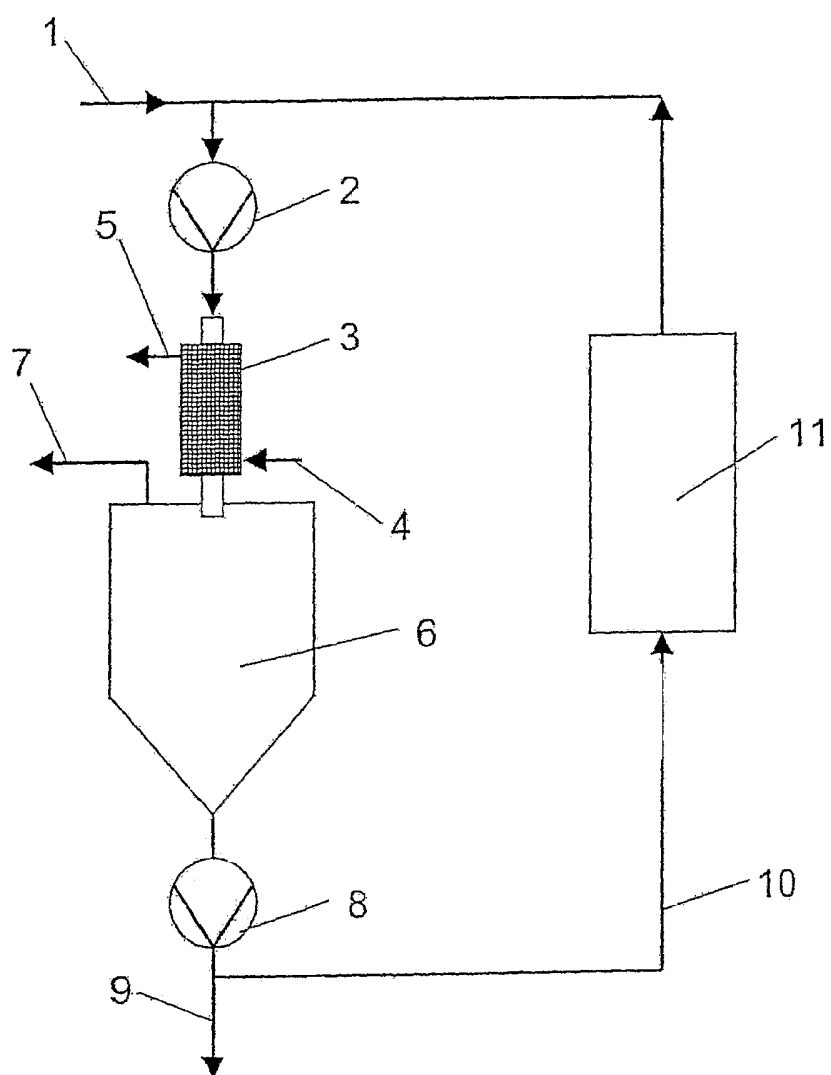


Fig. 2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP2004/008074

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 B01J19/00 F28D9/00

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 B01J F28D

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)

EP0-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 01/65194 A (ATECS MANNESMANN AG ; ECK KARL (DE)) 7 September 2001 (2001-09-07) page 2, lines 17-34 page 4, lines 16-22 page 6, lines 12-16 page 7, lines 5-8; figure 1 -----	1-7
A	DE 100 10 400 A (MANNESMANN AG) 6 September 2001 (2001-09-06) column 3, line 23 - column 4, line 43 column 7, lines 50-68 column 11, line 60 - column 12, line 46; figures 2,3 ----- -/--	1-7



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

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

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

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

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

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

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

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

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

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

10 November 2004

Date of mailing of the international search report

18/11/2004

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

Degen, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2004/008074

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EHRFELD W ET AL: "ANWENDUNGSPOTENTIALE CHEMISCHER UND BIOLOGISCHER MIKROREAKTOREN" JAHRBUCH. VERFAHRENSTECHNIK UND CHEMIEINGENIEURWESEN, XX, XX, vol. 69, no. 7, 1997, pages 102-116, XP000942778 paragraph '03.2!	1-7
A	----- US 6 200 536 B1 (WANG YONG ET AL) 13 March 2001 (2001-03-13) abstract -----	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2004/008074

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 0165194	A	07-09-2001	DE	10010397 C1	06-12-2001
			WO	0165194 A1	07-09-2001
<hr/>					
DE 10010400	A	06-09-2001	DE	10010400 A1	06-09-2001
			AU	5210001 A	12-09-2001
			WO	0165618 A2	07-09-2001
			EP	1261993 A2	04-12-2002
<hr/>					
US 6200536	B1	13-03-2001	CA	2295031 A1	07-01-1999
			EP	0991465 A1	12-04-2000
			JP	2002514296 T	14-05-2002
			WO	9900186 A1	07-01-1999
<hr/>					

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 B01J19/00 F28D9/00

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J F28D

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

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 01/65194 A (ATECS MANNESMANN AG ; ECK KARL (DE)) 7. September 2001 (2001-09-07) Seite 2, Zeilen 17-34 Seite 4, Zeilen 16-22 Seite 6, Zeilen 12-16 Seite 7, Zeilen 5-8; Abbildung 1 -----	1-7
A	DE 100 10 400 A (MANNESMANN AG) 6. September 2001 (2001-09-06) Spalte 3, Zeile 23 - Spalte 4, Zeile 43 Spalte 7, Zeilen 50-68 Spalte 11, Zeile 60 - Spalte 12, Zeile 46; Abbildungen 2,3 ----- -/--	1-7

☒ 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 naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

10. November 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

18/11/2004

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

Degen, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EHRFELD W ET AL: "ANWENDUNGSPOTENTIALE CHEMISCHER UND BIOLOGISCHER MIKROREAKTOREN" JAHRBUCH. VERFAHRENSTECHNIK UND CHEMIEINGENIEURWESEN, XX, XX, Bd. 69, Nr. 7, 1997, Seiten 102-116, XP000942778 Absatz '03.2! -----	1-7
A	US 6 200 536 B1 (WANG YONG ET AL) 13. März 2001 (2001-03-13) Zusammenfassung -----	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/008074

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 0165194	A	07-09-2001	DE	10010397 C1	06-12-2001
			WO	0165194 A1	07-09-2001
<hr/>					
DE 10010400	A	06-09-2001	DE	10010400 A1	06-09-2001
			AU	5210001 A	12-09-2001
			WO	0165618 A2	07-09-2001
			EP	1261993 A2	04-12-2002
<hr/>					
US 6200536	B1	13-03-2001	CA	2295031 A1	07-01-1999
			EP	0991465 A1	12-04-2000
			JP	2002514296 T	14-05-2002
			WO	9900186 A1	07-01-1999
<hr/>					