

## EUROPÄISCHE EIGNUNGSPRÜFUNG 2012

# Aufgabe B(Ch)

## Chemie

Diese Prüfungsaufgabe enthält:

- |   |  |                     |
|---|--|---------------------|
| * | Patentanmeldung  | 2012/B(Ch)/DE/1-7   |
| * | Bescheid<br>(einschließlich Anlage 1 mit den ursprünglich eingereichten<br>Ansprüchen) | 2012/B(Ch)/DE/8-10  |
| * | Dokument 1   | 2012/B(Ch)/DE/11-15 |
| * | Dokument 2   | 2012/B(Ch)/DE/16-17 |
| * | Schreiben des Anmelders  | 2012/B(Ch)/DE/18-19 |

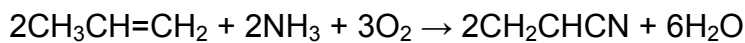


**Patentanmeldung**

**Verfahren und Vorrichtung zur Herstellung von Vinylcyanid und Acetonitril**

**[001]** Die Erfindung betrifft Verfahren und Vorrichtungen zur Herstellung von Vinylcyanid und Acetonitril.

**[002]** Vinylcyanid ist ein bekanntes chemisches Zwischenprodukt. Vinylcyanid entsteht durch die Reaktion von Propylen, Ammoniak und Sauerstoff in Gegenwart eines Eisen(III)-Katalysators wie z. B. Eisen(III)-chlorid, FeCl<sub>3</sub>. Die Reaktion ist folgende:



**[003]** Es wurde nun festgestellt, dass bei der Verwendung eines Kupfer(II)-Katalysators anstelle eines Eisen(III)-Katalysators als Reaktionsnebenprodukt auch signifikante Mengen von Acetonitril entstehen.

**[004]** Acetonitril hat die chemische Formel CH<sub>3</sub>CN. Acetonitril ist ebenfalls ein bekanntes chemisches Zwischenprodukt. Der Preis von Acetonitril kann sehr stark schwanken. Daher wäre es besonders nützlich, wenn man unterschiedliche Mengen von Acetonitril als Nebenprodukt eines anderen Verfahrens herstellen könnte, sodass bei einem hohen Preisniveau große Mengen von Acetonitril produziert werden können, die Anlage aber bei einem niedrigen Preisniveau zur Herstellung anderer profitabler Stoffe genutzt werden kann.



**[005]** Außerdem wurde festgestellt, dass die Acetonitrilausbeute erhöht werden kann, wenn eine Carbonsäure zu den Reaktanten hinzugefügt wird, bevor diese mit dem Katalysator in Kontakt kommen. Die Carbonsäure wird normalerweise als wässrige Lösung zugegeben. Die Konzentration der Carbonsäure beträgt 1-30 Kohlenstoff Mol.-% der Reaktanten. Keine Wirkung ist bei Konzentrationen unter 1 Kohlenstoff Mol.-% zu beobachten und keine Reaktion findet statt, wenn die Konzentration der Carbonsäure 30 Kohlenstoff Mol.-% übersteigt. Je höher die Carbonsäurekonzentration, desto höher ist die Acetonitrilkonzentration im Reaktionsprodukt. Wird mehr als 15 Kohlenstoff Mol.-% Carbonsäure zugegeben, wird die Reaktion jedoch zu langsam, um noch wirtschaftlich rentabel zu sein. Kohlenstoff Mol.-% bezeichnet den molaren prozentualen Mengenanteil an vorhandenen kohlenstoffhaltigen Verbindungen. Die Kohlenstoffverbindungen, die vorliegen können, umfassen Propylen, Vinylcyanid, Acetonitril, Kohlendioxid und eine oder mehrere Carbonsäuren.

**[006]** Durch die Erfindung wird also ein Verfahren zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid bereitgestellt, das das Inkontaktbringen von einem Gemisch enthaltend Propylen, Ammoniak und einem sauerstoffhaltigen Gas mit einem Kupfer(II)-Katalysator bei einer Temperatur von 200 bis 350°C umfasst.

**[007]** Durch die Erfindung wird außerdem eine Vorrichtung zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid bereitgestellt, wobei die Vorrichtung umfasst:

- i. einen Reaktor zur Aufnahme eines Reaktionsbetts,
- ii. Mittel zur Erhitzung des Reaktionsbetts im Reaktor,
- iii. mindestens eine Leitung zur Zuführung von Reaktanten in den Reaktor,
- iv. eine Leitung, über die Stoffe aus dem Reaktor austreten und in
- v. einen Sprühturm eintreten können, in dem Wasser auf die aus dem Reaktor austretenden Stoffe gesprüht wird,
- vi. einen Kühlturm zur Kondensation des aus dem Sprühturm austretenden Vinylcyanids und Acetonitrils sowie
- vii. einen Destillationsturm zur Abtrennung des Vinylcyanids und des Acetonitrils aus dem im Kühlturm entstehenden Kondensat.



**[008]** Die Reaktanten sind Propylen ( $C_3H_6$ ), Ammoniak und ein sauerstoffhaltiges Gas, z. B. Luft, und wahlweise eine Carbonsäure. Es muss nicht Luft verwendet werden. Mit Sauerstoff angereicherte Luft, reiner Sauerstoff oder andere sauerstoffhaltige Gase können ebenso verwendet werden. Das Vorhandensein von inerten Gasen, z. B. Stickstoff aus der Luft, verringert die Ausbeute nicht. Inerte Gase mindern die thermische Effizienz des Verfahrens, weil die inerten Gase erhitzt werden müssen. Die Carbonsäure muss Essigsäure oder Ameisensäure sein. Der Verwendung von anderen Carbonsäuren führt zu einer verminderten Ausbeute an Acetonitril und Vinylcyanid. Es ist essentiell, dass das Produkt mindestens 80 Kohlenstoff Mol.-% an Acetonitril und Vinylcyanid enthält. Der Kupfer(II)-Katalysator umfasst vorzugsweise Kupfer(II)-chlorid ( $CuCl_2$ ) oder Kupfer(II)-nitrat ( $Cu(NO_3)_2$ ), es können aber auch andere Salze verwendet werden. Der Katalysator ist granulat- oder pulverförmig. Die Partikelgröße ist unerheblich.

**[009]** Obwohl nicht wesentlich, liegen die Reaktanten in der Regel in etwa stöchiometrischen Mengen vor. Aus wirtschaftlicher Sicht ist es jedoch wichtig, dass die Reaktanten in stöchiometrischen Mengen zugeführt werden. Dies lässt sich - wie in der industriellen Chemie üblich - durch handelsübliche Systeme erreichen, so z. B. durch EZE-KHEM™ von Eze-Khem LLC.

**[010]** Figur 1 zeigt eine schematische Darstellung einer erfindungsgemäßen Vorrichtung.

**[011]** Sauerstoffhaltiges Gas, z. B. Luft (A), wird der Vorrichtung über eine Leitung 1 zugeführt. Eine Mischung (B) aus Propylen und Ammoniak tritt über eine Leitung 2 in die Vorrichtung ein. Um das Explosionsrisiko zu reduzieren, wird normalerweise das sauerstoffhaltige Gas von dem Propylen getrennt gehalten, bis die Reaktanten dem Reaktor zugeführt werden.



**[012]** Die Reaktanten werden in den Reaktor 3 überführt, der ein Katalysatorbett bei einer Temperatur von 200 bis 350°C enthält. Bei einer Temperatur unter 200°C verbleibt zu viel Propylen im Produkt. Bei einer Temperatur über 350°C findet eine übermäßige Oxidation statt, und es entsteht anstelle der angestrebten Produkte zu viel Kohlendioxid. Die Reaktionsprodukte umfassen Vinylcyanid, Acetonitril, Kohlendioxid und Essigsäure zusammen mit nicht umgesetzten Propylen.

**[013]** Die aus dem Katalysatorbett austretenden Reaktionsprodukte werden über eine Leitung 5 einem Sprühturm 4 zugeführt und mit Sprühwasser (C) in Kontakt gebracht. Das Sprühwasser kühlt die Reaktionsprodukte. Die Essigsäure löst sich im Wasser und wird zur nachfolgend beschriebenen weiteren Verwendung oder zur Entsorgung abgeleitet. Vinylcyanid, Acetonitril und Kohlendioxid werden in einen Kühlturm 6 überführt, in dem das Vinylcyanid und das Acetonitril kondensieren. Das Kohlendioxid kondensiert nicht und wird zusammen mit den inerten Gasen und dem nicht umgesetzten Propylen über eine Leitung 7 abgelassen. Normalerweise werden diese Gase (F), gegebenenfalls zusammen mit weiteren Brennstoffen, einem Brenner zugeführt, um den Katalysator zu erhitzen. Das kondensierte Vinylcyanid (D) und Acetonitril (E) werden einem Destillationsturm 8 zugeführt und durch fraktionierte Destillation getrennt. Die im Sprühturm 4 erhaltene wässrige Lösung der Essigsäure (G') kann über eine Leitung 9 in das Reaktionsbett zurückgeführt werden. Alternativ kann über eine Leitung 10 dem Reaktionsbett Säure (G) zugeführt werden.

### Beispiele

**[014]** Es wurden Reaktionen bei unterschiedlichen Temperaturen mit verschiedenen Katalysatoren und Reaktanten durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Die Reaktanten wurden jeweils in mittels EZE-KHEM™ bestimmten stöchiometrischen Mengen eingesetzt.



Tabelle 1

Versuch Nummer	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Katalysator	FeCl <sub>3</sub>	FeCl <sub>3</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	Cu(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
Temp. / °C	250	250	250	250	250	250	250	250	400	175	250
Hinzugefügte Ameisensäure	0	0	0	5	0	0	0	0	0	0	0
Hinzugefügte Essigsäure	0	5	0	0	5	10	0	0	0	0	0
Hinzugefügte Propionsäure	0	0	0	0	0	0	0	5	0	0	0
Zurückgeführte Essigsäure	0	0	0	0	0	0	2,5	0	0	0	0
Kohlendioxid im Produkt %	15	15	5	5	5	5	5	25	40	5	5
Vinylcyanid im Produkt %	80	75	90	87,5	87,5	85	88	66	50	40	90
Acetonitril im Produkt %	0	0	1	2,5	2,5	5	2	1,5	0	0	1
Essigsäure im Produkt %	0	5	2	2,5	2,5	2,5	2,5	2,5	10	0	2
Propylen im Produkt %	5	5	2	2,5	2,5	2,5	2,5	5	0	55	2



**[015]** Die Werte sind in Kohlenstoff Mol.-% angegeben. Die Zusammensetzung des Produkts wurde in einer aus Leitung 5 entnommenen Gasprobe gemessen.



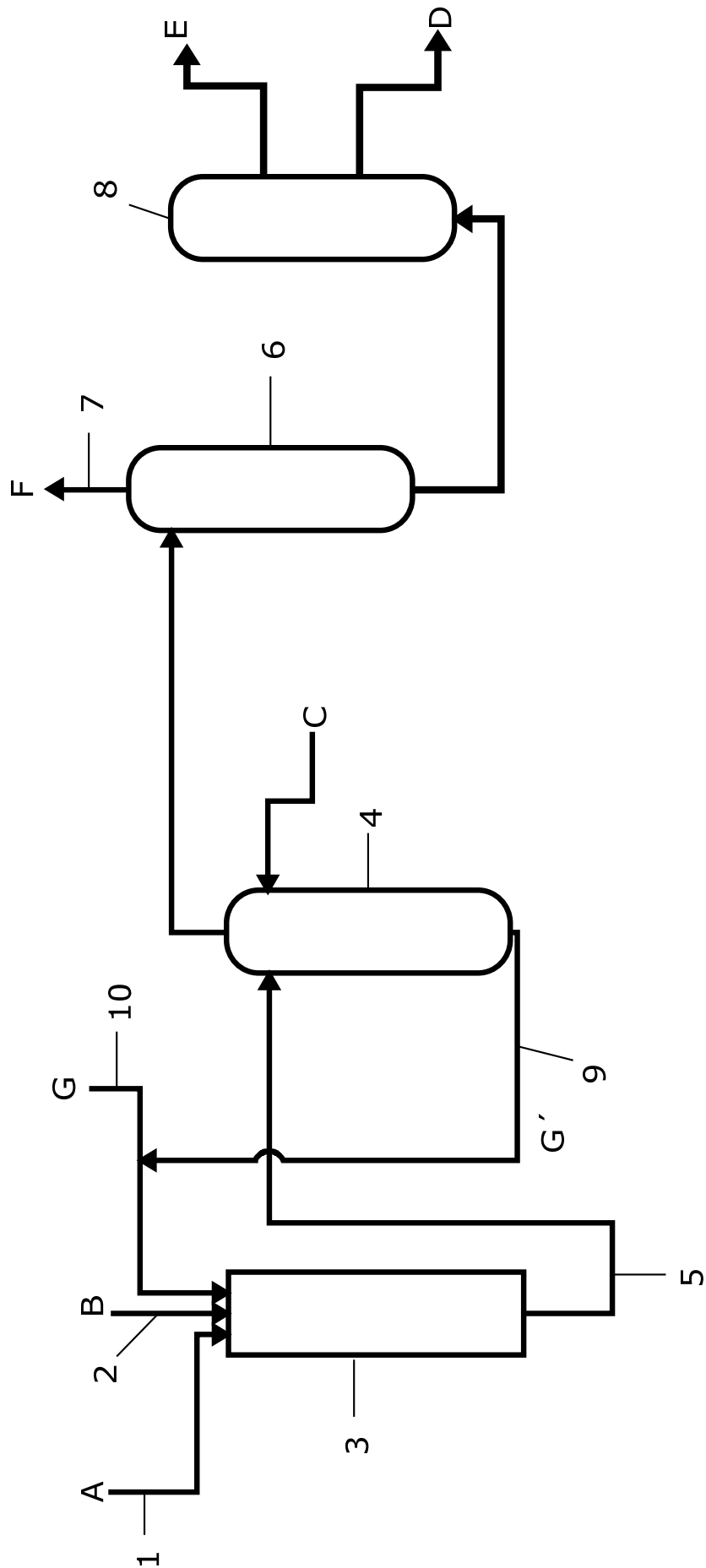
**[016]** Die Ergebnisse in Tabelle 1 zeigen, dass bei einer Temperatur von 200 bis 350°C bei der Verwendung eines Kupfer(II)-Katalysators Acetonitril gebildet wird. Acetonitril wird nicht gebildet, wenn der aus dem Stand der Technik bekannte Eisen(III)-Katalysator verwendet wird. Durch die Zugabe von Essigsäure oder Ameisensäure zu den Reaktanten erhöht sich die Menge des gebildeten Acetonitrils. Außerdem wird, wenn Ameisen- oder Essigsäure verwendet wird, ein größerer Anteil des zugeführten Propylens zu Vinylcyanid und Acetonitril umgesetzt. Dagegen führt die Verwendung von Propionsäure zur Erzeugung eines hohen Anteils von unerwünschtem Kohlendioxid. Die Verwendung der als Reaktionsnebenprodukt entstehenden Essigsäure ist, wie die Ergebnisse zeigen, ebenfalls möglich.

### Ansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid, das das Inkontaktbringen von einem Gemisch enthaltend Propylen, Ammoniak und einem sauerstoffhaltigen Gas mit einem Kupfer(II)-Katalysator bei einer Temperatur von 200 bis 350°C umfasst.
2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem das sauerstoffhaltige Gas Luft ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, bei dem der Kupfer(II)-Katalysator Kupfer(II)-chlorid oder Kupfer(II)-nitrat umfasst.
4. Vorrichtung zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid, wobei die Vorrichtung umfasst:
  - i. einen Reaktor (3) zur Aufnahme eines Reaktionsbetts,
  - ii. Mittel zur Erhitzung des Reaktionsbetts im Reaktor (3),
  - iii. mindestens eine Leitung (1, 2, 9, 10) zur Zuführung von Reaktanten in den Reaktor (3),
  - iv. eine Leitung (5), über die Stoffe aus dem Reaktor (3) austreten und in
  - v. einen Sprühturm (4) eintreten können, in dem Wasser auf die aus dem Reaktor (3) austretenden Stoffe gesprüht wird,
  - vi. einen Kühlturm (6) zur Kondensation des aus dem Sprühturm (4) austretenden Vinylcyanids und Acetonitrils sowie
  - vii. einen Destillationsturm (8) zur Abtrennung des Vinylcyanids und des Acetonitrils aus dem im Kühlturm (6) entstehenden Kondensat.



Fig. 1



**Bescheid nach Art. 94(3) EPÜ**

1. Die Prüfung wird auf der Grundlage der ursprünglich eingereichten Anmeldungsunterlagen durchgeführt; eine Kopie der Ansprüche in der ursprünglich eingereichten Fassung liegt diesem Bescheid als Anlage bei (Anlage 1).
2. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen; die Nummerierung wird auch im weiteren Verfahren beibehalten:

D1: EP 2 222 222 (CONFEDERATE CHEM CORP) 1. Juni 2008.

D2: J. CAT. CHEM., Bd. 59, S. 225, LE PEU, AGATHA ET AL.,  
"Kupfer(II)-Katalysatoren, Teil 3" 3. Juli 2008.

3. Die vorliegende Anmeldung nimmt keine Priorität in Anspruch. Der Anmeldetag ist der 4. Juli 2008.
4. Dokument D1 wurde am 1. Juni 2008 veröffentlicht. D1 (siehe Ansprüche 1 - 4) beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Vinylcyanid, das das Inkontaktbringen von einem Gemisch enthaltend Propylen, Ammoniak und einem sauerstoffhaltigen Gas mit einem Kupfer(II)-Katalysator bei einer Temperatur von 200 bis 350°C umfasst. D1 offenbart auch die in der Anmeldung beanspruchte Vorrichtung sowie die Verwendung von Luft als sauerstoffhaltiges Gas und von Kupfer(II)-chlorid und Kupfer(II)-nitrat als Katalysatoren. Die Ansprüche 1 - 4 sind daher nicht neu gegenüber Dokument D1 (Artikel 52 (1), 54 (1) und (2) EPÜ).
5. Dokument D2 wurde am 3. Juli 2008 veröffentlicht. D2 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid, das das Inkontaktbringen einer Mischung aus Propylen, Ammoniak und Luft mit einem Katalysator aus Kupfer(II)-chlorid bei einer Temperatur von 250°C umfasst. Die Ansprüche 1 - 3 sind daher nicht neu gegenüber Dokument D2 (Artikel 52 (1), 54 (1) und (2) EPÜ).



6. Wenn der Anmelder die Anmeldung aufrechterhalten will, sollten neue Patentansprüche eingereicht werden, die den vorstehenden Einwänden Rechnung tragen. Dabei ist darauf zu achten, dass die neuen Ansprüche den Erfordernissen des EPÜ in Bezug auf Klarheit, Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gegebenenfalls Einheitlichkeit genügen (Artikel 84, 54, 56 und 82 EPÜ). Auch dürfen keine Änderungen vorgenommen werden, die dazu führen, dass der Gegenstand über den Inhalt der Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht (Artikel 123 (2) EPÜ).
  
7. Im Antwortschreiben sollte der Unterschied zwischen dem neuen Anspruch und dem in den Dokumenten D1 und D2 offenbarten Stand der Technik dargelegt werden. Die der Erfindung zugrunde liegende technische Aufgabe gegenüber dem nächstliegenden Stand der Technik und deren Lösung sollten aus der Stellungnahme des Anmelders deutlich hervorgehen (Regel 42 (1) (c) EPÜ und EPA-Richtlinien, C-IV, 11.5).
  
8. Zur Erleichterung der Prüfung, ob die neuen Ansprüche Gegenstände enthalten, die über den Inhalt der Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen, wird der Anmelder gebeten, genau anzugeben, auf welche Passagen der Anmeldungsunterlagen sich die vorgeschlagenen Änderungen stützen (Artikel 123 (2) und Regel 137 (4) EPÜ).



**Anlage 1: Ansprüche in der ursprünglich eingereichten Fassung**

1. Verfahren zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid, das das Inkontaktbringen von einem Gemisch enthaltend Propylen, Ammoniak und einem sauerstoffhaltigen Gas mit einem Kupfer(II)-Katalysator bei einer Temperatur von 200 bis 350°C umfasst.
2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem das sauerstoffhaltige Gas Luft ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, bei dem der Kupfer(II)-Katalysator Kupfer(II)-chlorid oder Kupfer(II)-nitrat umfasst.
4. Vorrichtung zur Herstellung von Acetonitril und Vinylcyanid, wobei die Vorrichtung umfasst:
  - i. einen Reaktor (3) zur Aufnahme eines Reaktionsbetts,
  - ii. Mittel zur Erhitzung des Reaktionsbetts im Reaktor (3),
  - iii. mindestens eine Leitung (1, 2, 9, 10) zur Zuführung von Reaktanten in den Reaktor (3),
  - iv. eine Leitung (5), über die Stoffe aus dem Reaktor (3) austreten und in
  - v. einen Sprühturm (4) eintreten können, in dem Wasser auf die aus dem Reaktor (3) austretenden Stoffe gesprüht wird,
  - vi. einen Kühlturm (6) zur Kondensation des aus dem Sprühturm (4) austretenden Vinylcyanids und Acetonitrils sowie
  - vii. einen Destillationsturm (8) zur Abtrennung des Vinylcyanids und des Acetonitrils aus dem im Kühlturm (6) entstehenden Kondensat.

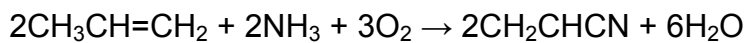


**Dokument 1 (EP 2 222 222)**

**Verfahren und Vorrichtung zur Herstellung von Vinylcyanid**

**[001]** Die Erfindung betrifft Verfahren und Vorrichtungen zur Herstellung von Vinylcyanid.

**[002]** Vinylcyanid ist ein bekanntes chemisches Zwischenprodukt. Vinylcyanid entsteht durch die Reaktion von Propylen, Ammoniak und Sauerstoff in Gegenwart eines Eisen(III)-Katalysators wie z. B. Eisen(III)-chlorid, FeCl<sub>3</sub>. Die Reaktion ist folgende:



**[003]** Es wurde nun festgestellt, dass sich die Ausbeute an Vinylcyanid bei der Verwendung eines Kupfer(II)-Katalysators anstelle eines Eisen(III)-Katalysators erhöht.

**[004]** Durch die Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung von Vinylcyanid bereitgestellt, das das Inkontaktbringen von einem Gemisch enthaltend Propylen, Ammoniak und einem sauerstoffhaltigen Gas, z. B. Luft, mit einem Kupfer(II)-Katalysator wie z. B. Kupfer(II)-chlorid oder Kupfer(II)-nitrat bei einer Temperatur von 200 bis 350°C umfasst.

**[005]** Durch die Erfindung wird außerdem eine Vorrichtung zur Herstellung von Vinylcyanid bereitgestellt, wobei die Vorrichtung umfasst:

- i. einen Reaktor zur Aufnahme eines Reaktionsbetts,
- ii. Mittel zur Erhitzung des Reaktionsbetts im Reaktor,
- iii. mindestens eine Leitung zur Zuführung von Reaktanten in den Reaktor,
- iv. eine Leitung, über die Stoffe aus dem Reaktor austreten und in
- v. einen Sprühturm eintreten können, in dem Wasser auf die aus dem Reaktor austretenden Stoffe gesprüht wird,
- vi. einen Kühlturm zur Kondensation des aus dem Sprühturm austretenden Vinylcyanids sowie
- vii. einen Destillationsturm zur Abtrennung des Vinylcyanids aus dem im Kühlturm entstehenden Kondensat.



**[006]** Der Katalysator umfasst ein Kupfer(II)-Salz. Bevorzugte Kupfer(II)-Salze sind Kupfer(II)-chlorid und Kupfer(II)-nitrat, die beide im Handel erhältlich sind.

**[007]** Die Reaktanten sind Propylen ( $C_3H_6$ ), Ammoniak und ein sauerstoffhaltiges Gas, z. B. Luft. Es muss nicht Luft verwendet werden. Mit Sauerstoff angereicherte Luft, reiner Sauerstoff oder andere sauerstoffhaltige Gase können ebenso verwendet werden. Das Vorhandensein von inerten Gasen, z. B. Stickstoff aus der Luft, verringert die Ausbeute nicht. Inerte Gase mindern die thermische Effizienz des Verfahrens, weil die inerten Gase erhitzt werden müssen.

**[008]** Obwohl nicht wesentlich, liegen die Reaktanten in der Regel in etwa stöchiometrischen Mengen vor. Aus wirtschaftlicher Sicht ist es jedoch wichtig, dass die Reaktanten in stöchiometrischen Mengen zugeführt werden. Dies lässt sich - wie in der industriellen Chemie üblich - durch handelsübliche Systeme erreichen, so z. B. durch EZE-KHEM™ von Eze-Khem LLC.

**[009]** Figur 1 zeigt eine schematische Darstellung einer erfindungsgemäßen Vorrichtung.

**[010]** Sauerstoffhaltiges Gas, z. B. Luft, wird der Vorrichtung über eine Leitung 1 zugeführt. Eine Mischung aus Propylen und Ammoniak tritt über eine Leitung 2 in die Vorrichtung ein. Um das Explosionsrisiko zu reduzieren, wird normalerweise das sauerstoffhaltige Gas von dem Propylen getrennt gehalten, bis die Reaktanten in den Reaktor eintreten. Um das Explosionsrisiko noch weiter zu verringern, kann eine weitere Leitung vorhanden sein, um ein inertes Gas dem Reaktor zuzuführen.

**[011]** Die Reaktanten werden in den Reaktor 3 überführt, der ein Katalysatorbett bei einer Temperatur von 200 bis 350°C enthält. Bei einer Temperatur unter 200°C verbleibt zu viel Propylen im Produkt. Bei einer Temperatur über 350°C findet eine übermäßige Oxidation statt, und es entsteht anstelle der angestrebten Produkte zu viel Kohlendioxid. Die Reaktionsprodukte umfassen Vinylcyanid, Kohlendioxid, Essigsäure und weitere Stoffe, unter anderem eine bislang nicht identifizierte niedermolekulare Substanz.



**[012]** Die Reaktionsprodukte sowie nicht umgesetztes Propylen, die aus dem Katalysatorbett austreten, werden über eine Leitung 5 einem Sprühturm 4 zugeführt und mit Sprühwasser in Kontakt gebracht. Das Sprühwasser kühlt die Reaktionsprodukte. Die Essigsäure löst sich im Wasser und wird zur Entsorgung abgeleitet. Vinylcyanid, Kohlendioxid und weitere Stoffe werden in einen Kühlturm 6 überführt, in dem das Vinylcyanid und einige Nebenprodukte kondensieren. Das Kohlendioxid kondensiert nicht und wird zusammen mit den inerten Gasen und etwaigem nicht umgesetzten Propylen über eine Leitung 7 abgelassen. Normalerweise werden diese Gase, gegebenenfalls zusammen mit weiteren Brennstoffen, einem Brenner zugeführt, um den Katalysator zu erhitzen. Das kondensierte Vinylcyanid wird einem Destillationsturm 8 zugeführt und durch fraktionierte Destillation gereinigt.

### Beispiele

**[013]** Es wurden Reaktionen bei unterschiedlichen Temperaturen mit verschiedenen Katalysatoren und Reaktanten durchgeführt. Ammoniak und Sauerstoff (aus der Luft) wurden in stöchiometrischen Mengen eingesetzt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

Tabelle 1

Versuch Nummer	1	2	3	4	5
Katalysator	FeCl <sub>3</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	CuCl <sub>2</sub>	Cu(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
Temp. / °C	250	250	400	175	250
Kohlendioxid im Produkt %	15	5	40	5	5
Vinylcyanid im Produkt %	80	90	50	40	90
Nicht identifiziertes Nebenprodukt im Produkt %	0	1	0	0	1
Essigsäure im Produkt %	0	2	10	0	2
Propylen im Produkt %	5	2	0	55	2



**[014]** Die Zusammensetzung des Produkts (gemessen in einer aus Leitung 5 entnommenen Probe) ist in Kohlenstoff Mol.-% angegeben (d. h. als prozentualer molarer Mengenanteil aller vorhandenen kohlenstoffhaltigen Verbindungen).

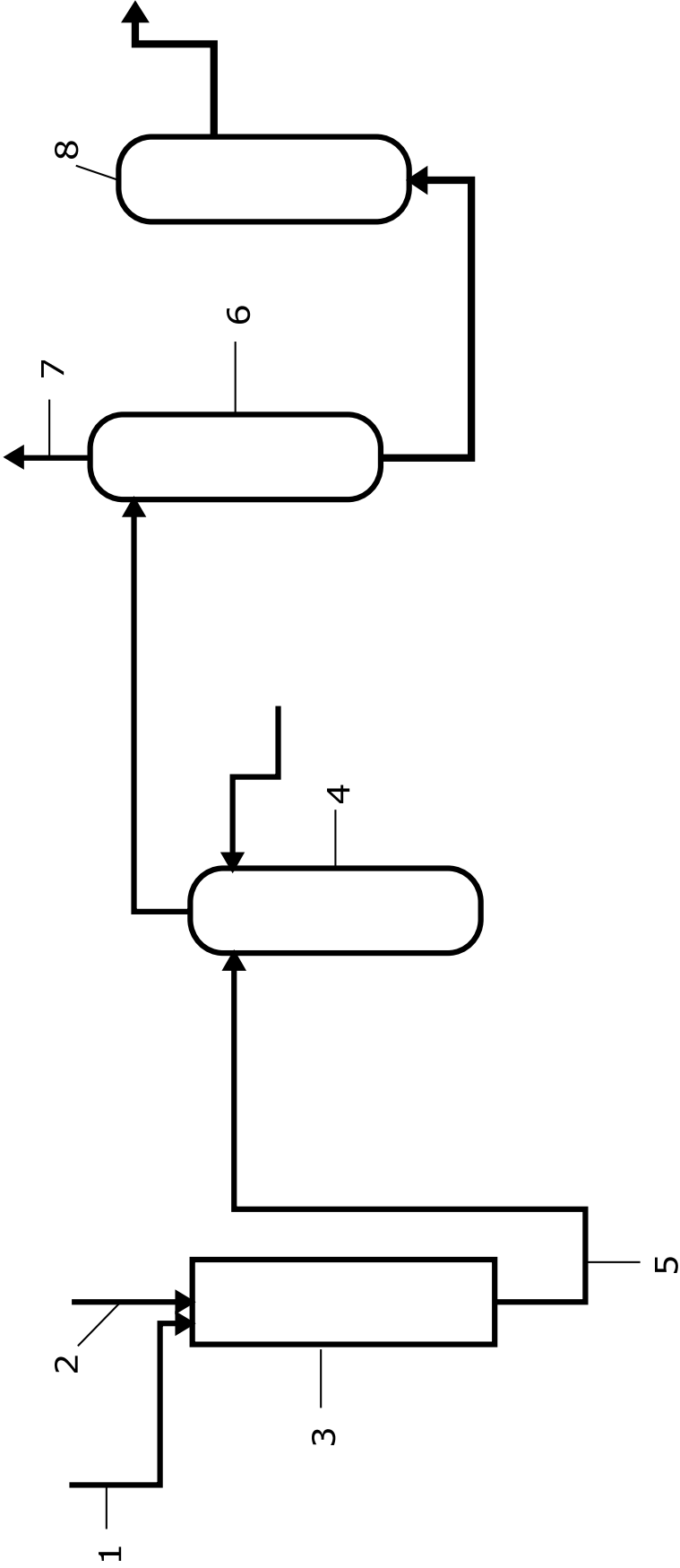
**[015]** Die Ergebnisse in Tabelle 1 zeigen deutlich, dass bei einer Temperatur von ungefähr 250 °C die Vinylcyanidausbeute bei Verwendung eines Kupfer(II)-Katalysators größer ist als bei Verwendung des aus dem Stand der Technik bekannten Eisen(III)-Katalysators.

### Ansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Vinylcyanid, das das Inkontaktbringen von einem Gemisch enthaltend Propylen, Ammoniak und einem sauerstoffhaltigen Gas mit einem Kupfer(II)-Katalysator bei einer Temperatur von 200 bis 350°C umfasst.
2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem das sauerstoffhaltige Gas Luft ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Anspruch 2, bei dem der Kupfer(II)-Katalysator Kupfer(II)-chlorid oder Kupfer(II)-nitrat umfasst.
4. Vorrichtung zur Herstellung von Vinylcyanid, wobei die Vorrichtung umfasst:
  - i. einen Reaktor (3) zur Aufnahme eines Reaktionsbetts,
  - ii. Mittel zur Erhitzung des Reaktionsbetts im Reaktor (3),
  - iii. mindestens eine Leitung (1, 2) zur Zuführung von Reaktanten in den Reaktor (3),
  - iv. eine Leitung (5), über die Stoffe aus dem Reaktor (3) austreten und in
  - v. einen Sprühturm (4) eintreten können, in dem Wasser auf die aus dem Reaktor (3) austretenden Stoffe gesprüht wird,
  - vi. einen Kühlturm (6) zur Kondensation des aus dem Sprühturm (4) austretenden Vinylcyanids sowie
  - vii. einen Destillationsturm (8) zur Abtrennung des Vinylcyanids aus dem im Kühlturm (6) entstehenden Kondensat.



Fig. 1 D1



**Dokument 2**

**Journal of Catalytic Chemistry (2008) 59, 225**

Agatha Le Peu, Hester Norway  
School of Chemistry  
University of Edgestow  
Edgestow  
Cateweba  
USA

**Kupfer(II)-Katalysatoren, Teil 3**

**[001]** Im Rahmen unserer laufenden Forschungen zu Kupfer(II)-Katalysatoren haben wir die Eigenschaften von Kupfer(II)-Katalysatoren, insbesondere von Katalysatoren aus Kupfer(II)-chlorid, bei Reaktionen von Propylen, Ammoniak und Luft untersucht. Stöchiometrische Reaktantengemische (bestimmt mittels EZE-KHEM) wurden durch ein aus Kupfer(II)-chlorid-Partikeln bestehendes Reaktionsbett mit einem Durchmesser von 5 cm und einer Länge von 5 m geleitet. Die Durchflussgeschwindigkeit betrug 50 l/min und die Temperatur 250 °C. Das Reaktionsbett war in Abständen von 1 m mit Auslässen versehen. An den Auslässen wurden Proben entnommen und analysiert. Die Ergebnisse sind nachstehend zusammengefasst.

**[002]** An den Ergebnissen lässt sich erkennen, dass die Größe der Katalysatorpartikel keinen Einfluss auf die Reaktion hat. Wir werden weiter erforschen, warum das so ist.



**[003]** Kupfer(II)-chlorid (Durchschnittlicher Partikeldurchmesser 100 µm)

Auslass Nummer	0	1	2	3	4	5
Propylen	100	78	56	33	8	5
Essigsäure	0	1	2	2	2	2
Vinylcyanid	0	20	40	60	84	87
Kohlendioxid	0	1	2	4	5	5
Acetonitril	0	0	0	1	1	1

**[004]** Kupfer(II)-chlorid (Durchschnittlicher Partikeldurchmesser 200 µm)

Auslass Nummer	0	1	2	3	4	5
Propylen	100	78	54	30	12	5
Essigsäure	0	1	2	2	2	2
Vinylcyanid	0	20	42	64	81	87
Kohlendioxid	0	1	2	4	5	5
Acetonitril	0	0	0	1	1	1



**Schreiben des Anmelders**

Confederate Chemical Corp Inc.  
Eagle Works  
1372 Clearwater Boulevard  
Springfield  
Fremont  
USA

Basil Don Bond  
Wright, Price and Gneiss  
Prince Peter Kropotkin Place  
Ankh-Morpork  
Lettland

Sehr geehrter Herr Bond,

**[001]** vielen Dank, dass Sie sich bereit erklärt haben, die Vertretung der Confederate Chemicals Inc. vor dem Europäischen Patentamt zu übernehmen. Wir fügen diesem Schreiben die Unterlagen bei, die uns unser bisheriger europäischer Patentvertreter geschickt hat. Wie er uns erklärt hat, ist heute der letzte Tag für eine Antwort. Wir sind der Meinung, dass Confederate Chemicals Inc. durch eine Lizenzierung der Erfindung potenziell sehr viel Geld verdienen kann.

**[002]** Die erhobenen Einwände sind unseres Erachtens nicht allzu gravierend, denn dieselben Einwände wurden auch vom US-Prüfer erhoben. Das US-Patent wurde uns erteilt, ohne dass wir Änderungen vornehmen mussten.

**[003]** D1 ist eine frühere von uns eingereichte Patentanmeldung. D1 und die jetzige Anmeldung haben denselben Erfinder, Homer J. Stillson. Wir haben die jetzige Anmeldung eingereicht, weil wir erkannten, dass unsere Erfindung mehr Aspekte umfasst, als in der ersten Anmeldung beschrieben. In den USA wurden die Einwände auf Basis von Dokument D1 zurückgezogen, weil der Erfinder bei beiden Anmeldungen gleich ist.



**[004]** D2 ist eine Arbeit der Forschungsgruppe um Professor Le Peu von der University of Edgewater. Der US-Prüfer war der Auffassung, unsere Erfindung sei identisch mit der von Professor Le Peu in ihrer Publikation beschriebenen. Der Erfinder unserer Anmeldung erläuterte dem US-Prüfer daraufhin, dass er die Idee gehabt habe, bevor Professor Le Peu daran arbeitete. Professor Le Peu bestätigte dies, und der Einwand wurde zurückgenommen.

**[005]** Falls Sie die Anmeldung ändern müssen, damit darauf ein Patent erteilt werden kann, haben Sie unsere Erlaubnis dazu. Der Kauf von Carbonsäuren und insbesondere Ameisensäure von Chemielieferanten ist bei den Mengen, in denen wir sie einzusetzen gedenken, teuer. Falls Sie also die Ansprüche ändern müssen, stellen Sie bitte sicher, dass Verfahren abgedeckt sind, bei denen Carbonsäuren nicht zugekauft werden müssen.

Mit freundlichen Grüßen,

Abe J Sampson III  
Geschäftsführer  
Confederate Chemical Corp Inc.

