

P.- 42.771

3774
L.P. 997

371750



371750

Memoria descriptiva

SECCION TECNICA
CLASIFICACION I. P. C.
CLASE <u>C-07</u>
SUBCLASE <u>C</u>

para solicitar CERTIFICADO DE ADICION por años

a nombre de LONZA S.A.

entidad ~~de nacionalidad~~ suiza

con domicilio en Gampel (Ranton Wallis) Suiza, Dirección:
Münchensteinerstr. 38, Basilea, Suiza.

por: "MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL Nº 366.851", solicitada el 6 de Mayo de 1.969, por: "Procedimiento para la preparación de dinitrilo de ácido malónico puro" (Clase Internacional C07c)

13.9.69



P. - 42.771

El invento concierne a un procedimiento para la preparación de dinitrilo de ácido malónico a partir de acetonitrilo y cloruro de cianógeno en fase gaseosa.

La patente principal número concierne a la preparación de dinitrilo de ácido malónico a partir de acetonitrilo y cloruro de cianógeno en fase gaseosa, y enseña a realizar la reacción de acetonitrilo y cloruro de cianógeno en el margen de temperaturas de 740 a 780°C y especialmente en el margen de 750 a 760°C.

Según el estado del conocimiento en el momento de la solicitud de la patente principal, no parecía adecuado trabajar a temperaturas que se encontraban por encima de 780°C, dado que temperaturas más elevadas conducen a descomposiciones, causan impurezas, y entonces los rendimientos se hacen más bajos. En el procedimiento de la patente principal se alcanzan rendimientos de dinitrilo de ácido malónico hasta de 70%, siendo los caudales a través de un reactor de 200 g de mezcla de partida de los reaccionantes por hora y por litro de volumen del reactor, es decir, se obtienen aproximadamente 40 g de dinitrilo de ácido malónico por hora y por litro de volumen del reactor. La proporción molar de cloruro de cianógeno a acetonitrilo se encuentra en este modo de trabajo entre 1:1 y 1:5, y especialmente entre 1:3 y 1:4. El tiempo de permanencia de los reaccionantes gaseosos en el

25
11.9.69.



reactor se encuentra entre 1 y 15, y preferiblemente entre 8 y 11, segundos.

En este modo de trabajo, los reaccionantes atraviesan los reactores en circulación laminar. En calidad de reactores se pueden utilizar recipientes tubulares, tales como tubos de cuarzo, tubos metálicos y similares.

Se ha encontrado ahora que se pueden alcanzar altos rendimientos, que pueden pasar del 80% de la teoría, con altos caudales, si se lleva a cabo la reacción de acetonitrilo y cloruro de cianógeno a temperaturas de 780 a 1200°C y se conducen los reaccionantes a través del reactor con una velocidad tan alta que atraviesan el reactor en el margen entre circulación laminar y circulación turbulenta o en el margen de la circulación turbulenta.

Los tiempos de permanencia pueden ser mantenidos más bajos al elevar la temperatura. Por encima de 850°C, este tiempo se encuentra convenientemente por debajo de 5 segundos. Entre aproximadamente 900 y 1100°C se utilizan tiempos de permanencia de 4 a 0,01 segundos.

Con el fin de obtener los rendimientos más altos que sean posibles, se emplean preferiblemente proporciones molares de cloruro de cianógeno a acetonitrilo desde 1 hasta por encima de 4. Como especialmente favorables se han mostrado proporciones molares dentro del margen 11.9.69.



gen de 1:6 hasta 1:9. Mayores proporciones molares, tales como 1:10, no aportan ninguna ventaja adicional.

Los productos que resultan de la reacción son enfriados inmediatamente después a temperaturas de 20 a
5 50°C, preferiblemente de 25 a 30°C.

Con el fin de evitar una destrucción del dinitrilo de ácido malónico resultante, es conveniente eliminar de modo continuo, desde la mezcla de reacción líquida el acetonitrilo que no ha reaccionado y el cloruro
10 de hidrógeno disuelto, por ejemplo por evacuación en vacío.

Sobre la dependencia de los rendimientos con la proporción molar, con la temperatura y con el tiempo de permanencia medio, se puede decir de modo general lo
15 siguiente: Cuanto más alta es la temperatura se deben emplear tiempos de permanencia tanto más cortos. La proporción molar también desempeña aquí un papel. Así, por ejemplo, para un rendimiento medio de aproximadamente 70% resultan los siguientes valores.

11.9.69.

371750

11.9.69.

- 5 -

Proporción molar de cloruro de cianógeno: acetónitrilo	Temperatura máxima, °C.	Tiempo de permeación medio, segundos	Gramos de dinitrilo de ácido malónico por hora y por litro de volumen del reactor.
1 : 4	860 - 890	3,5	99
1 : 5	890 - 910	1,5	189
1 : 6	890 - 920	1,0	242
1 : 7	900 - 930	0,8	262
1 : 8	890 - 930	0,8	233
1 : 9	860 - 920	1,0	170



371750



En comparación con el procedimiento de la patente principal, resulta el importante progreso de que, a causa del modo de la circulación con el que los reaccionantes atraviesan el reactor, se pueden lograr caudales muy esencialmente elevados y con ello rendimientos aumentados.

Se pudo comprobar de modo extraordinariamente sorprendente que es posible poder trabajar a las temperaturas dentro del margen desde por encima de 780°C hasta de 1200°C sin que aparezcan descomposiciones. En contra de las descomposiciones esperadas, que no aparecen al trabajar de acuerdo con el procedimiento del invento, ahora es incluso posible elevar los rendimientos llevando a cabo el procedimiento del invento.

15 EJEMPLOS

En un tubo de cuarzo calentado hasta una temperatura máxima de 900°C, con un diámetro interno de 90 mm, en el cual a lo largo de una longitud de 2,03 m se mantuvo la temperatura de reacción, se introdujeron cloruro de cianógeno y acetonitrilo en la proporción molar de 1:4,69, siendo hechos reaccionar en el espacio de una hora 7,5 kg de acetonitrilo y 2,4 kg de cloruro de cianógeno, con un caudal de 770 g de mezcla de partida por hora y por litro de volumen del reactor. El tiempo de permanencia fue de 2,13 segundos. Los productos de la reac-

11.9.69.

22 SEP



5 ción fueron enfriados de modo continuo y fueron liberados de cloruro de hidrógeno y de acetonitrilo que no había reaccionado. La mezcla de reacción contenía 1,83 kg de dinitrilo de ácido malónico, lo cual corresponde a un rendimiento de 71,2% de la teoría, referido al cloruro de cianógeno empleado.

En la siguiente tabla están especificados algunos ejemplos con diversas condiciones de ensayo.

11.9.69.

- 7 -

371750



Ensayo No	Proporción molar cloruro de cianógeno:acetónitrilo	Temperatura máxima °C	Tiempo de permanencia medio, segundos	Rendimiento en % de la teoría
1	1 : 4,69	900	2,13	71,2
2	1 : 4,65	860	4,06	75,5
3	1 : 4,73	945	2,32	61,9
4	1 : 6,55	863	4,46	81,6
5	1 : 8,76	904	3,10	79,3
6	1 : 4,24	804	4,75	73,5
7	1 : 2,97	860	3,41	67,5
8	1 : 8,76	900	3,28	79,8
9	1 : 9,42	879	2,74	78,6
10	1 : 1,43	800	4,70	39,6
11	1 : 7	990	0,80	62,0

11.9.69.



Los ejemplos 7 y 10 muestran que, al reducirse la proporción molar, disminuyen fuertemente los rendimientos.

11.9.69.

371750



Esta solicitud que corresponde a la presentada en Suiza el 20 de Junio de 1.969, bajo el número - 9442/69, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre la Propiedad Industrial.

5

REIVINDICACIONES

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Certificado de Adición en España, son los siguientes:

10 1.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 366.851 solicitada el 6 de mayo de 1.969 por: "Procedimiento para la preparación de dinitrilo de ácido malónico puro" a partir de acetonitrilo y cloruro de cianógeno en fase gaseosa, caracterizadas porque la reacción de acetonitrilo y cloruro de cianógeno se
15 lleva a cabo a temperaturas de 780 a 1200°C y se conducen los reaccionantes a través del reactor con una velocidad tal alta que éstos atraviesan el reactor dentro del margen entre circulación laminar y circulación turbulenta o en el margen de la circulación turbulenta.

20 2.- Mejoras según la reivindicación 1, ca-

371750

18.9.69

22 SEP 1969



caracterizadas porque se trabaja con una proporción molar de cloruro de cianógeno a acetonitrilo desde 1 hasta por encima de 4.

5 3.- Mejoras según la reivindicación 1, caracterizadas porque desde la mezcla de reacción se eliminan inmediatamente el acetonitrilo que no ha reaccionado y - el cloruro de hidrógeno disuelto.

10 4.- "MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL Nº 366.851", solicitada el 6 de Mayo de 1.969, por: "Procedimiento para la preparación de dinitrilo de ácido malónico puro".

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y con los fines que se han especificado.

15 Esta Memoria consta de once hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, 22 SEP. 1969

P.A.

SECRETARÍA DE ESTADO
DE ECONOMÍA Y FINANZAS
por S. S. *Arta*

371750

18.9.69 IFG