

ROYAUME DU MAROC

OFFICE MAROCAIN DE LA PROPRIETE (19)
INDUSTRIELLE ET COMMERCIALE



المملكة المغربية

المكتب المغربي
للملكية الصناعية والتجارية

(12) FASCICULE DE BREVET

(11) N° de publication : **MA 32879 B1** (51) Cl. internationale : **C01C 3/00**
(43) Date de publication : **01.12.2011**

(21) N° Dépôt : **33915**
(22) Date de Dépôt : **03.06.2011**
(30) Données de Priorité : **10.11.2008 EP 08019609.0 ; 10.11.2008 US 61/112,874**
(86) Données relatives à l'entrée en phase nationale selon le PCT : **PCT/EP2009/007992 09.11.2009**
(71) Demandeur(s) : **LONZA LTD, Münchensteinerstrasse 38 CH-4052 Basel CH-4052 BASEL (CH)**
(72) Inventeur(s) : **KLEGRAF, Ellen ; GRÜTZNER, Thomas ; KELLER, Jan**
(74) Mandataire : **ABU-GHAZALEH INTELLECTUAL PROPERTY (TMP AGENTS)**

(54) Titre : **PROCEDE DE PREPARATION D'ETHANE DINITRILE**
(57) Abrégé : L'invention concerne un procédé de préparation d'éthane dinitrile, par réaction d'acide cyanhydrique en phase liquide avec de l'acide nitrique en présence d'un catalyseur à base d'ion cuprique.

Abrégé :

L'invention porte sur un procédé de préparation d'éthane dinitrile.

5

Dr. Bernd Gallasch

Bâle, 9 novembre 2009.

Description

32879B1

01 DEC 2011

L'invention porte sur un procédé de préparation d'éthane dinitrile à partir de l'acide cyanhydrique.

5 L'éthane dinitrile (cyanogène, $(CN)_2$) est un gaz stable et incolore qui a été préparé pour la première fois dans le laboratoire en 1815 par la décomposition thermique du cyanure d'argent. Grâce à sa réactivité, l'éthane dinitrile est un élément constitutif prometteur pour la synthèse des composés selon la révision de Roesky et Hofmann in *Chemiker Zeitung* 1984,7-8, 231-238. Il est aussi utile comme agent de fumigation tel qu'indiqué dans US, 6,001,383 et WO2005/037332. En outre, l'éthane dinitrile se présente comme un ingrédient prometteur
10 dans les systèmes de propulsion des fusées.

Dans des procédés connus, l'éthane dinitrile est composé d'acide cyanhydrique en présence de l'oxygène, des nitrates et d'un catalyseur de cuivre.

15 US 3,135,582 révèle la préparation d'éthane dinitrile par la mise en réaction de l'oxygène et un oxyde d'azote avec l'acide cyanhydrique en présence d'un catalyseur à une température entre 100 à 1000°C.

US 3,949,061 révèle la préparation d'éthane dinitrile par la réaction de l'acide cyanhydrique dans une solution aqueuse en présence de l'oxygène élémentaire et les nitrates de cuivre.

20 US 3,769,388 révèle l'oxydation de l'acide cyanhydrique en présence de l'oxygène, un moyen dont la grande partie est un liquide anhydre, une quantité catalytique de cuivre, du ruthénium ou du mercure et un nitrate.

US 3,494,734 révèle la réaction de l'acide cyanhydrique avec le dioxyde d'azote en présence d'un ion cuprique comme catalyseur.

25 DE 1163302A révèle l'oxydation de l'acide cyanhydrique en présence de sels cupriques dans des solutions fortement acides, alors que dans les exemples et la description l'oxydation est effectuée à un pH d'environ 2,8. Selon les exemples, la réaction est effectuée en présence d'un sel d'ammonium et de l'oxygène élémentaire ainsi qu'un réactif supplémentaire pour activer l'oxygène élémentaire.

Riemenschneider, W. révèle dans *Chemtech* 1976, 658-661 qu'il est souhaitable d'utiliser un léger excès d'oxygène dans la réaction de l'oxyde d'azote avec l'acide cyanhydrique.

30 Jusqu'à aujourd'hui, les procédés disponibles pour la préparation sont insatisfaisants en matière de rendement et de sélectivité. Aussi, la récupération de l'éthane dinitrile à partir des gaz des effluents est difficile et particulièrement en présence d'un excès d'oxyde d'azote.

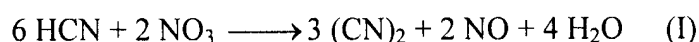
Le problème technique à résoudre était la fourniture d'une méthode alternative pour la préparation d'éthane dinitrile.

35 Le problème a été résolu par le procédé de la revendication 1.

L'objet de la revendication est un procédé de préparation d'éthane dinitrile ((CN₂)) à partir de l'acide cyanhydrique (HCN) en phase condensée, par une oxydation catalytique de l'acide cyanhydrique en présence d'un catalyseur à base d'ion cuprique et un solvant polaire et aprotique, se caractérisant par le fait que l'acide nitrique (HNO₃) est ajouté comme l'unique
5 oxydant durant l'oxydation de l'acide cyanhydrique. Ainsi, ni NO, ni NO₂ ni N₂O₄ ne sont ajoutés directement au mélange de la réaction.

Lors de la réaction, un gaz incolore contenant principalement l'éthane dinitrile, NO et l'eau se développe du mélange de la réaction après avoir contacté l'acide cyanhydrique et l'acide nitrique. Ledit gaz incolore ne contient visiblement pas de N_xO_y, dont y égale 2x (par exemple
10 NO₂ ou N₂O₄). L'éthane dinitrile peut être facilement séparé à la fois du NO et de l'eau. Le NO peut être recyclé pour le procédé après la ré-oxydation en acide nitrique. Etonnamment, le NO qui forme les gaz des effluents ne fait plus de réaction dans les gaz des effluents et peut être facilement séparé du produit. Le fait de minimiser la quantité du N_xO_y, dont y égale 2x (par exemple NO₂ ou N₂O₄) dans le circuit de produit principal réduit les risques écologiques
15 potentiels.

L'équation (I) montre la stœchiométrie du présent procédé :



Selon l'équation (I), deux moles de l'acide nitrique sont consommées dans le procédé en réaction à six moles de l'acide cyanhydrique pour obtenir trois moles d'éthane dinitrile, deux
20 moles de l'oxyde nitrique et quatre moles d'eau. Cependant, l'oxyde nitrique obtenu peut être ré-oxydé avec de l'oxygène élémentaire et mis en réaction avec l'eau pour obtenir de l'acide nitrique, au moins en théorie, dans un procédé appliqué de façon continue dont la seule quantité de l'acide nitrique requise est celle du commencement.

Dans un mode de réalisation préféré, dans le procédé, l'acide nitrique et l'acide cyanhydrique
25 sont ajoutés simultanément avec un rapport molaire dans les environs de 1:2 à 1:3,5.

Dans le présent procédé l'acide nitrique signifie acide nitrique « concentré » comportant au moins 40%, préférablement au moins 60%, plus préférablement environ 65 % en poids de HNO₃. L'acide nitrique d'une haute concentration, jusqu'à l'acide nitrique fumant (~100% en poids de HNO₃), peut être utilisé aussi dans le procédé. Un autre aspect de la présente
30 invention est la réutilisation de l'agent d'oxydation dans un circuit fermé comme le présentent les figures 1 et 2. L'oxyde nitrique (NO) obtenu du procédé peut être oxydé avec de l'oxygène pour obtenir du dioxyde d'azote (NO₂ ou N₂O₄) qui peut être mis en réaction avec de l'eau pour donner un acide nitrique ayant une concentration maximale d'environ 65% en poids.

Dans un mode de réalisation préféré ledit acide nitrique peut être réutilisé directement, minimisant ainsi la nécessité de stockage et de transport de l'acide nitrique.
35

L'acide nitrique est consommé de manière stœchiométrique dans le procédé. Donc, quand l'acide nitrique et l'acide cyanhydrique sont ajoutés simultanément en une proportion plus ou moins stœchiométrique il n'y aura aucun ou seulement un petit excès de l'acide nitrique dans

le procédé. Ainsi, la réaction peut être gérée en sécurité. Après être séparé du produit, le NO est ré-oxydé dans un circuit séparé pour recycler l'acide nitrique utilisé dans le procédé. En utilisant l'acide nitrique recyclé, seule une petite quantité initiale d'acide nitrique est requise dans le procédé.

- 5 Dans un mode de réalisation préféré, la réaction est essentiellement effectuée en l'absence de l'oxygène élémentaire. L'utilisation de l'acide nitrique à la place du dioxyde d'azote comme oxydant permet l'absence de l'oxygène élémentaire dans le mélange de la réaction, évitant ainsi la présence et la formation du dioxyde d'azote qui est difficile à séparer du mélange de gaz du produit gazeux contenant l'éthane dinitrile et l'oxyde nitrique. Quand on effectue la
- 10 réaction en l'absence de l'oxygène élémentaire, la formation du dioxyde d'azote et le dimère correspondant ne peut être déterminée. Aussi, le mélange gazeux du produit était totalement incolore. Un autre avantage de l'utilisation de l'acide nitrique est que la formation du dioxyde de carbone et d'autres gaz qui doivent être enlevés du procédé est réduite.

- 15 Dans un mode de réalisation préféré, la quantité d'eau présente dans le mélange de réaction est de $\leq 20\%$ en poids de la phase liquide, plus préférablement dans la gamme de 0,1 à 20% en poids, et particulièrement préférablement entre 0,5 et 10% en poids.

- 20 Selon les figures 1 et 2, le procédé peut être appliqué de manière discontinue ou continue, dans lequel une partie du mélange de réaction est retirée et l'eau est enlevé avant que le mélange à quantité d'eau réduite, facultativement après l'ajout du solvant d'appoint et le catalyseur de cuivre, ne soit recyclé au réacteur.

Les solvants polaires et aprotiques appropriés peuvent être sélectionnés à partir d'un groupe composé des nitriles, des éthers, des éthers glycoliques et des esters d'éthers glycoliques, des composés nitrés, des sulfones, des esters, des amides, des thioamides et des composés polaires, aromatiques et hétérocycliques.

- 25 Il n'est pas nécessaire que le solvant reste stable contre l'acide nitrique pendant une longue durée car il n'y a qu'un petit excès de l'acide nitrique dans le procédé.

Les nitriles sont préférablement sélectionnés à partir d'un groupe composé de l'acétonitrile, le cyanure d'éthyle, le benzonitrile, le butyronitrile, le phénylacétonitrile, et le *p*-tolunitrile.

- 30 Les esters préférés sont sélectionnés à partir d'un groupe composé de propanoate de méthyle, propanoate d'éthyle, acétate d'éthyle, acétate de propyle, acétate de butyle, carbonate de diméthyle, carbonate de diéthyle, trichloracétate d'éthyle, chloracétate d'éthyle, acétate de méthyle, acétate d'isopentyle, benzoate de méthyle, benzoate d'éthyle, malonate de diéthyle, acétoacétate d'éthyle, phtalate de diméthyle, butyrolactone, carbonate de propylène, carbonate d'éthylène et phtalate de dibutyle.

- 35 Les éthers glycoliques et les esters d'éthers glycoliques préférés sont sélectionnés à partir d'un groupe composé d'éther diméthylglycol d'éthylène glycol, éther diéthylglycol, éther dipropylique d'éthylène glycol, éther dibutylique d'éthylène glycol, éther diméthylglycol de 1,2-propylène glycol, éther méthylglycol et éthylique de 1,2-propylène glycol, éther diéthylglycol de 1,2-propylène glycol, éther dipropylique de 1,2-propylène glycol, éther

5 méthylique et butylique de 1,2-propylène glycol, éther diméthylique de 1,2-propylène glycol, éther diméthylique de 1,2-butylène glycol, éther triméthylique de glycérol, éther triéthylique de glycérol, éther tripropylique de glycérol, éther diméthylique de glycérol, éther diméthylique de diéthylène glycol, éther diéthylique de diéthylène glycol, éther diméthylique de dipropylèneglycol, éther diméthylique de triéthylèneglycol et l'acétate d'éther monométhylique de propylène glycol.

Le composé nitré préféré est sélectionné à partir d'un groupe composé de 2-nitropropane, de 1-nitropropane, de nitroéthane, de nitroéthane et de nitrobenzène.

Un sulfone approprié est par exemple un sulfolane.

10 L'éther préféré est sélectionné à partir du groupe composé de 1,4-dioxane, éther méthylique de *tert*-butyle, éther di-isopentyle, furane, tétrahydrofurane, tétrahydrofurane de méthyle, anisole, tétrahydropyran, phénétole, 1,3-dioxolane, éther de di-*n*-propyle, éther de diisopropyle, éther di-*n*-butyle, éther de di-*tert*-butyle, éther de diphényle et éther de dibenzyle.

15 L'amide préféré est sélectionné à partir du groupe composé de *N,N*-diméthylformamide, *N,N*-diméthylformamide, tétraméthylurée, tétraéthylurée, *N,N*-diméthylacétamide, *N,N*-diéthylacétamide, *N*-méthylacétamide, *N*-méthyleformamide, formamide, pyrrolidinone-2 et 1-méthyle-2-pyrrolidinone.

20 Le composé polaire hétérocyclique aromatique préféré est sélectionné à partir du groupe composé de pyridine, de méthyléthylpyridine, de 2,3-diméthylpyrimidine-1-one, de 1,3-diméthylpyrimidine-2-one et de lutidines (2,3-, 2,4-, 2,5-, 2,6-, 3,4- ou 3,5-diméthylpyrimidine).

Un thioamide préféré est par exemple est 1-méthylpyrrolidine-2-thione.

Dans le présent procédé, le catalyseur de cuivre comprend des ions cupriques.

25 En présence de l'acide nitrique, presque tout alliage, complexe et sel de cuivre sera oxydé pour donner des ions cupriques.

Ainsi, lesdits ions cupriques sont générés par du cuivre métallique ou un alliage de cuivre, par un complexe de cuivre(0), un sel de cuivre(I) ou un complexe de cuivre(I), un sel de cuivre (II) ou un complexe de cuivre(II), et les mélanges de ces composants.

30 Le terme « cuivre(0) » comporte du cuivre métallique et des alliages de cuivre, avec plus de préférence dans une forme finement divisée, par exemple un métal rectifié ou un alliage. Le terme « composés de cuivre(0) » comporte les complexes métalliques y compris des atomes de cuivre formellement neutres.

35 Le terme « composés de cuivre(I) » comporte des sels de cuivre(I) et des complexes métalliques y compris les ions Cu^+ .

Les sels de cuivres(I) convenables sont sélectionnés à partir de l'acétate de Cu(I), le bromure de Cu(I), le chlorure de Cu(I), l'iodure de Cu(I), l'oxyde de Cu(I) et le cyanure de Cu(I).

L'expression « composés de cuivre(II) » comporte les sels de cuivre(II) et les complexes métalliques y compris les ions cupriques (Cu^{2+}).

- 5 Il est préférable qu'un sel de cuivre(II) qui peut être dissous au moins un des solvants susmentionnés soit utilisé dans le présent procédé. Les sels de cuivre(II) convenables sont par exemple le nitrate de cuivre(II), le chlorure de cuivre(II), le bromure de cuivre(II), l'iodure de cuivre(II), le sulfate de cuivre(II), le cyanure de cuivre(II), l'oxyde de cuivre(II), le pyrophosphate de cuivre(II), le sulfure de cuivre(II), l'hydroxyphosphate de cuivre(II), le
- 10 carbonate de cuivre(II), l'hydroxyde de cuivre(II) et les sels de cuivre(II) d'acides carboxyliques non-aromatiques et aromatiques comme l'acétate de cuivre(II), le formiate de cuivre(II), l'acétylacétonates de cuivre(II), le tartrate de cuivre(II), l'oxalate de cuivre(II), le citrate de cuivre(II), le benzoate de cuivre(II), le méthylacétoacétate de cuivre(II), l'éthylacétoacétate de cuivre(II), l'éthylbenzoylacétate de cuivre(II), le
- 15 trifluorométhansulfonate de cuivre(II), le phtalate de cuivre(II) ou le toluenesulfonate.

Dans un mode de réalisation préféré l'acide cyanhydrique est placé dans le récipient de la réaction alors que l'acide nitrique est ajouté au mélange.

- Plus avantageusement, seul le catalyseur, facultativement dissous le solvant ou mélangé avec celui-ci, est placé dans le réacteur et l'acide nitrique et l'acide cyanhydrique sont ajoutés
- 20 simultanément, de manière discontinue ou continue, au mélange de réaction alors que la réaction continue.

- Si l'acide cyanhydrique et l'acide nitrique sont ajoutés simultanément ou à des portions alternatives il n'est pas nécessaire de les ajouter d'une manière stœchiométrique en même temps. Cependant, pour éviter la suroxydation et des réactions secondaires avec le solvant, il
- 25 est recommandé d'avoir l'acide cyanhydrique et l'acide nitrique dans le réacteur plus ou moins selon la proportion stœchiométrique de l'équation I. Pour éviter une conversion incomplète de l'acide cyanhydrique, l'acide nitrique peut être aussi ajouté à un petit excès sans avoir un effet néfaste.

- Le procédé peut être effectué à une température dans les environs de 15 à 150°C,
- 30 préférablement entre 50 à 100°C, plus préférablement entre 60 à 90°C.

- Le fait de réaliser le procédé à une grande pression peut causer des problèmes au niveau de l'obtention du produit sous une forme gazeuse, ainsi le produit doit être récupéré à partir du mélange du liquide de la réaction. En présence de l'acide nitrique, l'éthane dinitrile réagit plus ou moins rapidement avec l'eau formé dans la réaction. Donc, la température et la pression de
- 35 la réaction du liquide doivent être à un niveau qui permet de facilement enlever le produit gazeux du réacteur. Le plus préférable est que la réaction soit réalisée à une pression approximativement atmosphérique.

Après le mélange de l'acide cyanhydrique et l'acide nitrique un courant de gaz produit contenant l'éthane dinitrile est immédiatement formé. Avantageusement, ledit courant de gaz

produit est continuellement déchargé du réacteur est soumis à plus de traitement conclusif, dans lequel l'éthane dinitrile est séparé du courant de gaz produit.

5 Il est possible de séparer l'éthane dinitrile du courant de gaz produit de différentes manières, par exemple par congélation, condensation, absorption/désorption ou adsorption/désorption de l'éthane dinitrile.

Particulièrement préférable, l'éthane dinitrile dans le courant de gaz produit est absorbé dans un solvant est récupéré à partir dudit solvant.

10 Pour minimiser l'élimination des déchets, les couts, la quantité d'acide nitrique utilisée et les dangers environnementaux, le présent procédé offre la possibilité de recycler l'oxyde nitrique obtenu de la réaction de l'acide cyanhydrique et l'acide nitrique. Avantagement, au niveau industriel l'oxyde nitrique (NO) de l'effluent est oxydé pour obtenir le dioxyde d'azote (NO₂). L'oxydation du NO en présence de l'oxygène (O₂) élémentaire est très connue dans le domaine. L'ajout dudit NO₂ obtenu du NO de rejet à l'eau donne une solution aqueuse

15 avec de l'eau est aussi connue dans le domaine. Le recyclage du NO de rejet du procédé peut donc minimiser l'ajout du HNO₃ immédiatement après le lancement du procédé.

Ainsi, dans un mode de réalisation préféré, l'oxyde nitrique du courant de gaz produit est ajouté à un réacteur isolé où il est oxydé avec un gaz qui contient de l'oxygène pour obtenir le dioxyde d'azote, et l'acide nitrique obtenu est recyclé pour la réaction avec l'acide

20 cyanhydrique.

Un mode de réalisation préféré de la réaction est d'effectuer la réaction dans un procédé continu, dans lequel, dans le procédé, seules les charges de l'acide cyanhydrique, de l'oxygène élémentaire et du courant d'appoint sont requises. De manière opportune, ledit procédé de recyclage nécessite un recyclage efficace de solvant et de catalyseur dans une

25 pureté convenable et à grande productivité. La pureté convenable, préférablement élevée, de chaque composant récupéré est préférée car l'enrichissement des sous-produits et/ou des produits de décomposition peuvent avoir un effet néfaste sur la durée de vie du procédé. L'utilisation d'un solvant à point ébullition élevée dans la réaction de l'acide nitrique avec l'acide cyanhydrique à l'avantage de faciliter l'isolation du cyanogène du mélange de la

30 réaction.

Dans un mode de réalisation préféré, le présent procédé est effectué en tant que procédé continu, dans lequel, facultativement, au moins le solvant et le catalyseur organique sont récupérés.

35 La réaction de l'acide nitrique et l'acide cyanhydrique est réalisée de manière opportune dans un solvant organique qui est essentiellement le même que celui utilisé pour le traitement conclusif de l'éthane dinitrile.

Dans un mode de réalisation préféré, le traitement conclusif de l'éthane dinitrile est effectué en utilisant un solvant pour récupérer l'éthane dinitrile à partir du mélange du courant de gaz produit. Préférablement, ledit solvant, dans des températures d'environ +30°C ou moins, a

soit de bonnes propriétés d'absorption de l'éthane dinitrile et de faibles propriétés d'absorption de l'oxyde nitrique.

5 Dans une température entre -5 à +30°C, l'acétonitrile solubilise l'éthane dinitrile mieux que l'oxygène nitrique et peut être donc utilisé pour séparer les deux composés de manière efficace.

Ainsi, dans une mode de réalisation préféré, le solvant organique serait l'acétonitrile.

10 Dans un mode de réalisation particulièrement préféré, la réaction de l'acide nitrique et l'acide cyanhydrique est effectué avec l'acétonitrile comme solvant organique et le courant de gaz produit, facultativement après avoir passé par un condensateur, est ajouté à une colonne absorbante avec un débit à contre-courant de l'acétonitrile. L'acétonitrile à contre-courant absorbe principalement l'éthane dinitrile alors que l'oxyde nitrique reste sous forme de gaz, et finalement l'éthane dinitrile produit est récupéré à partir de l'acétonitrile est retiré du procédé, alors que l'acétonitrile récupéré est recyclé pour le procédé. L'utilisation de l'acétonitrile pour la réaction et la récupération de l'éthane dinitrile à partir du courant de gaz produit offre un recyclage efficace de composés et une récupération du produit à grande productivité.

15 Dans un mode de réalisation très particulièrement préféré, l'éthane dinitrile produit est récupéré à partir de l'acétonitrile, après avoir été isolé de l'oxyde nitrique, dans une colonne absorbante.

20 Facultativement, l'oxyde nitrique récupéré est oxydé en présence d'un gaz qui contient de l'oxygène pour obtenir le dioxyde d'azote, qui est mis en réaction avec de l'eau pour obtenir l'acide nitrique. L'acide nitrique recyclé peut être réutilisé dans le procédé.

25 Les figures 1et 2 illustrent le procédé de l'invention dans un mode de réalisation préféré, dans lequel l'acide nitrique et le solvant organique sont recyclés dans le procédé (Fig.1) et dans une forme plus détaillée particulièrement adoptée à l'utilisation de l'acétonitrile comme solvant organique polaire (Fig. 2).

Description des Figures :

Figure 1 :

30 La Figure 1 illustre un mode général du procédé et le recyclage de l'acide nitrique. Le réacteur 01 est équipé des lignes 21, 22, 23 et 24 pour fournir, respectivement, la charge de l'acide cyanhydrique, de l'acide nitrique, de catalyseur et du solvant. Bien que dans un procédé continu la majeure partie de l'acide nitrique, du solvant et de catalyseur est recyclée à travers les lignes de recyclages 37, 40 et 43, les lignes 22, 23 et 24 peuvent être aussi utilisées pour des fins de traitement conclusif pendant le procédé, alors que la ligne 21 est aussi utilisé pour fournir l'acide cyanhydrique requis pendant la réaction. Les lignes 33 et 34 fournissent respectivement de l'oxygène élémentaire et de l'eau pour ré-oxyder l'oxyde nitrique.

35 Le courant de gaz produit déchargé dans la ligne 25 à partir du réacteur 01, contenant l'éthane dinitrile, l'acide nitrique, le solvant organique et de l'eau et des traces de dioxyde de carbone,

est ajouté à un condensateur **02**, dans lequel la majeure partie du solvant organique et de l'eau est condensée et le condensat dans la ligne **26**, facultativement après l'enlèvement totale ou partiel de l'eau, est recyclé au réacteur **01**. Le courant de gaz produit restant du condensateur **02** est ajouté dans la ligne **27** à une unité de traitement conclusif **12** pour isoler l'éthane dinitrile. Le courant de gaz produit dans la ligne **27** contient l'éthane dinitrile, l'oxyde nitrique et de petites quantités de gaz rares comme le dioxyde de carbone et la quantité de son solvant et son eau et réduite en grande partie. L'unité de traitement conclusif **12** contient (i) la ligne **32** pour le produit gazeux, composé principalement de l'éthane dinitrile, (ii) une ligne d'élimination **28** d'un effluent, composé principalement du solvant organique récupéré et des traces d'eau, qui est rechargé sur le réacteur **01** pour stopper l'accumulation des composés non désirés (de l'eau par exemple) dans l'unité de traitement conclusif **12**, et (iii) une ligne **29** composé principalement de l'oxyde nitrique et de gaz rares comme le dioxyde de carbone.

Le courant de gaz de la ligne **29** est rechargé sur le réacteur **07**, dans lequel en présence d'un gaz qui contient de l'oxygène, ajouté à travers la ligne **33**, l'oxyde nitrique est oxydé pour obtenir le dioxyde d'azote, avantageusement en présence d'un catalyseur. Le courant de gaz de l'effluent de la ligne **35**, qui contient le dioxyde d'azote, est facultativement recyclé au réacteur **08**, et mis en réaction avec l'eau, ajouté à travers la ligne **34**, pour obtenir l'acide nitrique. Le réacteur **08** contient la ligne **36** pour éliminer les gaz épuisés comme le dioxyde de carbone. L'acide nitrique est facultativement chargé sur la ligne **37** vers le réacteur **01** ou utilisé ailleurs.

Unité **12** de traitement conclusif :

Selon les caractéristiques thermodynamiques de dans la ligne **27**, différentes techniques d'isolation peuvent être utilisées. Un mode de réalisation préféré serait une combinaison d'une colonne d'absorption avec une unité de régénération pour le recyclage du solvant. L'éthane dinitrile est absorbé dans le solvant de la colonne d'absorption avec une haute sélectivité et est libéré dans l'unité subséquente de régénération, qui contient la désorption, la distillation ou la rectification. Une autre possibilité de traitement conclusif est l'absorption des gaz rares dans un solvant convenable. Ainsi, l'éthane dinitrile est le produit majeur de la première colonne.

Comme alternative à la récupération de l'éthane dinitrile par absorption/régénération, il est aussi possible d'utiliser par exemple (i) les techniques d'absorption, c'est-à-dire l'absorption de l'éthane dinitrile sur une désorption absorbante et subséquente en utilisant un solvant, ou (ii) des techniques d'extraction liquide-liquide pour isoler l'éthane dinitrile des autres composés de la réaction. Les moyens nécessaires pour le recyclage du solvant dans les deux exemples sont connus pour une personne expérimentée.

Une autre alternative pour la récupération de l'éthane dinitrile est de congeler l'éthane dinitrile directement à partir du courant gazeux du produit. Cela peut être effectué en utilisant des lignes d'échange thermique parallèles, que l'on perfuse alternativement par le courant de gaz du produit. Lorsque l'éthane dinitrile est solidifié dans une ligne, l'éthane dinitrile solidifié dans l'autre ligne est ré-vaporisé et obtenu en une forme presque pure.

Dans la ligne **38**, une quantité partielle du mélange de la réaction, en mode continue ou discontinue, ledit mélange de la réaction contient du solvant organique, de l'eau, du catalyseur, éthane dinitrile dissous et de petites quantités de l'acide nitrique et de l'acide cyanhydrique inaltérés, est déchargé à partir du réacteur **01**, et ajouté à l'unité **13** de traitement conclusif. Dans l'unité **13** de traitement conclusif, l'eau est isolée du mélange de la réaction, comme montré et bien détaillé ci-dessous, et est déchargé du procédé dans la ligne **41**, alors que le solvant, organique, le catalyseur, et l'acide nitrique récupérés sont recyclés dans la ligne **40** pour réacteur **01**. L'unité **13** de la récupération du solvant contient aussi une conduite de dérivation **43**, qui contient un mélange de solvant, d'éthane dinitrile et d'acide cyanhydrique, qui est aussi recyclé pour le réacteur.

Unité **13** de récupération du solvant :

Selon les caractéristiques thermodynamiques du mélange qui contient le solvant organique, de l'eau et du catalyseur l'isolation peut être effectuée par exemple en utilisant une simple distillation ou rectification pour des mélanges zéotropiques, une rectification modulée en pression ou une rectification avec des agents d'entraînement (par exemple des éthers ou des hydrocarbures), pour des mélanges azéotropiques dans des configurations de colonne convenables connues pour à toute personne expérimentée en la matière. Les colonnes peuvent être sélectionnées à partir des colonnes à plateaux, des colonnes à bulles, des colonnes à plateaux de barbotage ou des colonnes régulièrement ou irrégulièrement remplies. Alternativement, les techniques d'isolation de la barrière de diffusion comme l'évaporation, la pervaporation ou l'ultrafiltration peuvent être utilisées pour isoler l'eau de la réaction. En sus des méthodes susmentionnées, il est aussi possible d'utiliser les étapes d'adsorption, d'absorption ou d'extraction pour isoler l'eau du mélange de la réaction.

Figure 2 :

La figure 2 illustre un mode préféré du procédé en utilisant l'acétonitrile comme solvant polaire principale. Selon la Figure 1, le réacteur **01** est équipé en lignes **21**, **22**, **23** et **24** pour fournir respectivement la charge de l'acide cyanhydrique, l'acide nitrique, du catalyseur et du solvant organique (c'est-à-dire l'acétonitrile). L'acide nitrique, le solvant organique (c'est-à-dire l'acétonitrile) et le catalyseur sont aussi ajoutés à travers les lignes de recyclage **37**, **40** et **43** respectivement. Les lignes **22**, **23**, et **24** peuvent être aussi utilisées pour des objectifs de traitement conclusif pendant le procédé, alors que la ligne **21** est aussi utilisée pour fournir l'acide cyanhydrique requis pendant la réaction. Les lignes **33** et **34** fournissent respectivement de l'oxygène élémentaire et de l'eau pour ré-oxyder l'oxyde nitrique.

Le courant de gaz produit provenant du réacteur **01**, contenant l'éthane dinitrile, l'oxyde nitrique, du solvant organique (i.e. l'acétonitrile), de l'eau et des traces de dioxyde de carbone est ajouté dans la ligne **25** à un condensateur **02**. Le condensat, qui contient du solvant organique (i.e. l'acétonitrile) et de l'eau, facultativement après l'enlèvement partiel ou total de l'eau, est recyclé à travers la ligne **26** au réacteur **01**. L'affluent gazeux obtenu dans la ligne **27** à partir du condensateur **02**, contenant l'éthane dinitrile et l'oxyde nitrique, avec de petites quantités des gaz rares comme le dioxyde de carbone, et seulement de petites quantités du solvant organique (i.e. l'acétonitrile) et de l'eau est chargé sur la ligne **27** vers le fond d'une

colonne absorbante **03** au contrecourant d'un courant du solvant organique (i.e. l'acétonitrile) qui est recyclé dans la ligne **30** pour la colonne qui se trouve devant la ligne **03**. La colonne absorbante **03**, qui fonctionne à une température d'environ -5 à +30°C, préférablement entre 0 à +15°C, peut être une colonne remplie, remplie avec un remplissage régulier ou irrégulier, ou une colonne à plateau, une colonne à bulles ou une colonne à plateau de barbotage. Le mélange de la ligne **28**, qui contient l'acétonitrile et des traces d'eau, est enlevé de la colonne **03** à partir d'un tuyau de sortie, monté sur le côté de la colonne devant la colonne, et il est rechargé au réacteur **01**. Le recyclage de la ligne **28** au réacteur **01** évite l'accumulation de l'eau et du solvant organique (i.e. l'acétonitrile) dans la colonne **03** dans le train absorbant/désorbant pendant le fonctionnement continu.

Le produit de fond de la colonne **03**, contenant du solvant organique (i.e. l'acétonitrile), l'éthane dinitrile et l'eau, est déchargé dans la ligne **31**, est ajouté à un réchauffeur **04** et est ensuite recyclé à la tête d'une colonne désorbante **05**. Le courant général de la colonne **03**, contenant l'oxyde nitrique avec des traces des gaz rares, est avantageusement ajouté dans la ligne **29** à un réacteur d'oxydation **07** pour obtenir l'acide nitrique comme indiqué ci-dessous.

L'isolation de l'acétonitrile des impuretés et d'autres composés qui sont dangereux pour le processus (i.e. l'eau) est effectuée selon l'état actuel des réalisations connu à toute personne expérimentée en la matière, par exemple l'utilisation d'une basse pression et/ou une température élevée, dans la colonne de désorption **05**. Avantageusement, la colonne **05** est configurée comme une colonne remplie, remplie avec un remplissage régulier ou irrégulier, ou comme une colonne à plateau, une colonne à bulles ou une colonne à plateau de barbotage. Un courant du solvant organique (i.e. l'acétonitrile) rectifié, qui peut encore contenir de l'eau, est déchargé à partir du fond de la colonne **05** et ajouté dans la ligne **30** à un échangeur thermique **06**. En suite, l'acétonitrile est chauffé à la température de fonctionnement de la colonne **03**, puis il est recyclé à la tête de la colonne **03**. Le courant général de la colonne **05** est déchargé dans la ligne **32**, contenant l'éthane dinitrile gazeux pure produit, qui peut être utilisé directement ou peut être récupéré par exemple après le refroidissement ou la condensation. Il est aussi possible de faire passer l'éthane dinitrile gazeux ou liquéfié à travers une base pour obtenir un composé hydrolysé de cet éthane dinitrile.

Comme indiqué dans la figure 1 ci-dessus, l'oxyde nitrique récupéré dans la colonne **03** à partir du courant gazeux du produit de la ligne **25**, est ré-oxydé pour obtenir l'acide nitrique et rechargé en tant qu'acide nitrique dans la ligne **37** pour le réacteur **01** pour réduire la quantité de l'agent d'oxydation requise pour lancer le procédé.

Dans la ligne **38** une quantité partielle du mélange de la réaction, soit en mode continue ou discontinue, ledit mélange de réaction contient du solvant organique (i.e. l'acétonitrile), de l'eau, du catalyseur, de l'éthane dinitrile dissous et de petites quantités d'acide nitrique inaltéré, est déchargé à partir du réacteur **01**, et ajouté à une colonne de rectification **09**, fonctionnant à une pression d'environ 0,8 à 20 bars, préférablement entre 0,8 à 8 bars, particulièrement préféré entre 4 à 6 bars. Dans la colonne **09** le courant gazeux du produit est divisé en (i) un courant général, contenant une composition presque azéotropique du solvant organique (i.e. l'acétonitrile), de l'eau et des traces l'éthane dinitrile et d'acide cyanhydrique,

qui est ajouté dans la ligne **39** à la colonne de distillation **10**, et (ii) un produit de fond, contenant l'acide nitrique et des traces d'eau, qui est recyclé dans la ligne **40** au réacteur **01**. La colonne de distillation fonctionne à une basse pression d'environ 0,05 à 1 bar, préférablement entre 0,1 à 0,5 bar. Dans la colonne **10**, le mélange de la ligne **39**, qui est la

5 colonne du courant général de la colonne **09**, est divisé en (i) un courant général et (ii) un produit de fond. Le courant général (i) est ajouté dans la ligne **42** à un condenseur **11**, alors que le produit de fond (ii) composé principalement de l'eau est déchargé dans la ligne **41** à partir du procédé. Lors du fonctionnement en mode continu, l'eau déchargée dans la ligne **41**, correspond approximativement à la quantité molaire d'eau obtenue du réacteur **01** si

10 l'ensemble de la quantité d'eau est contrôlée à un niveau constant. Dans le condenseur **11**, le surplus du courant ajouté par la ligne **42** est divisé en (i) une fraction de liquide condensée, contenant un mélange du solvant organique (i.e. l'acétonitrile) presque azéotropique et de l'eau, qui est recyclée dans la ligne **44** à la tête de la colonne **09**, et (ii) un courant gazeux, contenant l'éthane dinitrile, l'acide cyanhydrique et le solvant organique (i.e. l'acétonitrile),

15 qui est recyclé à la ligne **43** pour le réacteur **01**.

Liste des modes de réalisation des Figures 1 et 2 :

- 01** : Réacteur
- 02** : Echangeur thermique (Condensateur)
- 03** : Colonne d'absorbant
- 20 **04** : Echangeur thermique
- 05** : Colonne de désorption
- 06** : Echangeur thermique
- 07** : Réacteur
- 08** : Réacteur
- 25 **09** : Colonne de rectification
- 10** : Colonne de distillation
- 11** : Echangeur de chaleur
- 12** : Unité de traitement conclusif pour la récupération du produit à partir de l'oxyde d'azote
- 13** : Unité de la récupération du solvant
- 30 **21** : Charge de l'acide cyanhydrique
- 22** : Charge de l'acide nitrique
- 23** : Charge de l'acide du catalyseur

- 24 : Charge du solvant**
- 25 : Courant gazeux produit provenant du réacteur**
- 26 : Courant de solvant dont la quantité du produit est réduite**
- 27 : Courant gazeux du produit dont la quantité du solvant est réduite**
- 5 **28 : Courant d'élimination (eau condensée et courant de solvant dont la quantité du produit est réduite)**
- 29 : Courant gazeux contenant l'oxyde nitrique et des gaz rares**
- 30 : Lavage du solvant pour récupérer l'éthane dinitrile**
- 31 : Solvant avec l'éthane dinitrile est l'eau**
- 10 **32 : Courant gazeux du produit de l'éthane dinitrile**
- 33 : Gaz contenant de l'oxygène**
- 34 : Charge d'eau**
- 35 : Courant de gaz du dioxyde d'azote**
- 36 : Courant de gaz de rejet**
- 15 **37 : Acide nitrique recyclé**
- 38 : Quantité partielle du mélange de la réaction**
- 39 : Courant du solvant et d'eau**
- 40 : Recyclage en boucle pour le catalyseur récupéré**
- 41 : L'eau enlevée du procédé**
- 20 **42 : Courant général**
- 43 : Courant de dérivation du solvant, de l'éthane dinitrile et de l'acide cyanhydrique**
- 44 : Fraction de liquide condensée du mélange de solvant et de l'eau**

Exemples :

- 25 Seulement dans les exemples ayant comme objectif de déterminer facilement la production de l'éthane dinitrile, le gaz produit de l'effluent a été passé à travers un décapant de base (solution de KOH) qui absorbe presque complètement l'éthane dinitrile contrairement à NO et N₂ qui restent en état gazeux. Comme indiqué dans les exemples, le présent procédé évite le développement du dioxyde d'azote ainsi que d'autres composés d'azote hautement oxydés, résumés comme N_xO_y avec y égale 2x.

Exemple 1 :

- Le trihydrate de nitrate de cuivre (II) (95% en poids, 10,5 g, 42 moles) dans l'acétonitrile (694 ml) a été placé dans un récipient à 2 l (Lambax, Mettler) sous l'azote et chauffé à 70°C. Dans 2h, l'acide cyanhydrique (HCN, 100%, 63,1 g) et l'acide nitrique (65% en poids, 84,5 g) ont été ajoutés au mélange simultanément à cette température. Après l'ajout complet, le mélange a été agité pendant 30 min supplémentaires. Un gaz incolore, indiquant l'absence du NO₂, a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Selon l'analyse chromatographique du gaz, le gaz produit de l'effluent avait la composition suivante : éthane dinitrile ((CN)₂) : 64,9%, NO et N₂ : 32,5%, CO₂ : 2,6%, HCN : 0%, H₂O : 0% et acétonitrile (pic du solvant).
- 10 Le mélange gazeux a été nettoyé de l'acétonitrile dans un refroidisseur dont la température a été ajustée à -15°C. En suite, le mélange gazeux restant a été passé à travers une solution KOH aqueuse (10% en poids). Le (CN)₂ absorbé a été calculé à 45 g, correspondant à une production de 85%.

Exemple 2 :

- 15 Le trihydrate de nitrate de cuivre (II) (95% en poids, 7 g, 30 moles) dans l'acétonitrile (902 ml) a été placé dans un récipient à 2 l (Lambax, Mettler) sous l'azote et chauffé à 70°C. Dans 2h 30 min, HCN (81,6 g) et l'acide nitrique (65% en poids, 102,6 g) ont été ajoutés au mélange simultanément à cette température. Après l'ajout complet, le mélange a été agité pendant 60 min supplémentaires. Un gaz incolore, indiquant l'absence du NO₂, a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Selon l'analyse chromatographique du gaz, le gaz produit de l'effluent avait la composition suivante : (CN)₂ : 65,6%, NO et N₂ : 31,7%, CO₂ : 2,8%, HCN : 0%, H₂O : 0% et acétonitrile (pic du solvant). Le mélange gazeux a été nettoyé de l'acétonitrile dans un refroidisseur dont la température a été ajustée à -15°C. Ensuite, le mélange gazeux restant a été passé à travers une solution KOH aqueuse (10% en poids), (CN)₂ et le CO₂ a été presque complètement absorbé. Le (CN)₂ absorbé a été calculé à 65 g, correspondant à une production de 80%.

Exemple 3 :

- 30 Le trihydrate de nitrate de cuivre (II) (95% en poids, 10 g, 40 moles) dans l'acétonitrile (660 ml) a été placé dans un récipient à 2 l (Lambax, Mettler) sous l'azote et chauffé à 70°C. Dans 4h 30 min, HCN (100%, 149,8 g) et l'acide nitrique (65% en poids, 194 g) ont été ajoutés au mélange simultanément à cette température. Après l'ajout complet, le mélange a été agité pendant 60 min supplémentaires. Un gaz incolore, indiquant l'absence du NO₂, a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Selon l'analyse chromatographique du gaz, le gaz de l'effluent avait la composition suivante : (CN)₂ : 69,3%, NO et N₂ : 28,5%, CO₂ : 0,5%, HCN : 1,3%, H₂O : 0% et acétonitrile (pic du solvant). Le mélange gazeux a été nettoyé de l'acétonitrile dans un refroidisseur dont la température a été ajustée à -15°C. Ensuite, le mélange gazeux restant a été passé à travers une solution KOH aqueuse (10% en poids) dans laquelle le (CN)₂ et le CO₂ ont été absorbés. Le (CN)₂ absorbé a été calculé à 116 g, correspondant à une production de 78%.

Exemple 4 :

Le trihydrate de nitrate de cuivre (II) (95% en poids, 10,0 g, 40 mole) dans l'acétonitrile (356 ml) a été placé dans un récipient à 2 l (Lambax, Mettler) sous l'azote et chauffé à 70°C. Dans 3h, HCN (100%, 99,7 g) et l'acide nitrique (65% en poids, 129,6 g) ont été ajoutés au mélange simultanément à cette température. Après l'ajout complet, le mélange a été agité pendant 30 min supplémentaires. Un gaz incolore, indiquant l'absence de NO_2 a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Selon l'analyse chromatographique du gaz, le gaz de produit de l'effluent avait la composition suivante : $(\text{CN})_2$: 46,1%, $\text{NO}+\text{N}_2$: 42,0%, CO_2 : 10,7%, HCN: 0,3%, H_2O : 0,3%. Le mélange gazeux restant a été passé à travers une solution KOH aqueuse (10% en poids) dans laquelle le $(\text{CN})_2$ et le CO_2 ont été absorbés. L'éthane dinitrile absorbé a été calculé à 72 g, correspondant à une production de 54%.

Exemple 5 :

Dans un récipient à 2 l (Labmax, Mettler), un mélange de trihydrate de nitrate de cuivre (II) (95% en poids, 10,0 g, 40 mol), d'acétonitrile (600 ml) et d'eau (63 ml) est préparé sous l'azote et chauffé à 70°C. Dans 3h, l'acide cyanhydrique (100% en poids, 0,54 g/min) et d'acide nitrique (65 % en poids, 0,72 g/min) sont ajoutés au mélange simultanément et agités ensuite pendant 30 min supplémentaires à cette température. Pendant l'ensemble du temps de la réaction, une quantité est continuellement déchargée à partir du mélange de la réaction et aussi continuellement remplacée par un mélange de trihydrate de nitrate (10,0 g) de cuivre (II) dans l'acétonitrile (600 ml). Le déchargement ainsi que le chargement sont effectués à un taux d'ajout de 1,5 g/min. Le courant de gaz qui s'approche immédiatement du mélange après l'ajout de HCN était incolore. Un gaz incolore, indiquant l'absence de NO_2 , a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Selon l'analyse chromatographique, le produit de gaz de l'effluent avait la composition suivante pendant l'ensemble du temps de la réaction : $(\text{CN})_2$: 70,6 à 71,4%, $\text{NO}+\text{N}_2$: 27,9 à 29,9%, CO_2 : 0,3 à 0,8%, HCN : 0 à 0,5%, H_2O : 0 à 0,1%. Le courant gazeux du produit a été passé à travers un refroidisseur dont la température est maintenue à -15°C pour enlever l'acétonitrile. Finalement, le $(\text{CN})_2$ (97 g) a été obtenu en une production de 80%.

Exemple de comparaison 1 :

Selon l'exemple 2 série 4 de US 3.949.061, une solution aqueuse de nitrate de cuivre (II) (500 ml, contenant 190,5 g de nitrates de cuivre (II), 750 moles) a été placée dans un récipient à 2 l (Labmax, Mettler) sous l'azote et le pH ajusté à environ pH 0 avec 65% en poids d'acide nitrique (79 g). Dans 30 min HCN (100%, 41,5 g) a été ajouté à 20°C sous agitation. Un gaz marron, indiquant la présence de NO_2 , a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Le mélange a été chauffé à 30°C pendant 30 min et constamment agité pendant 30 min supplémentaires. Ensuite, du HCN (15,5 g) supplémentaire a été ajouté à 30°C. Le mélange a été agité pendant 30 min supplémentaires à 30°C. Avec le premier dosage de HCN, l'oxygène a été ajouté à travers une fritte au mélange à 0,23 mol/h pendant 15 min, et après réduit à 0,12 mol/h, qui a été poursuivi jusqu'à ce que la réaction a été arrêtée. L'analyse chromatographique de gaz appliquée sur le gaz épuisé a révélé une diminution au niveau de la teneur en $(\text{CN})_2$ de 22,3% à 4,5% pendant la réaction. A cause de la faible production voire la

- diminution du contenu de $(\text{CN})_2$ dans le gaz épuisé, la température de la réaction a été élevée de 20°C à 30°C et le dosage parallèle de HCN et O_2 s'est poursuivi pendant 3h supplémentaires. Cependant, le $(\text{CN})_2$ a baissé à 4,6%, NO , N_xO_y avec y égale $2x$, et le nN_2 a augmenté à 74%, alors que HCN a augmenté à environ 20%. Pendant la réaction, la solution
- 5 bleue claire est devenue une suspension verdâtre a cause de l'apparition de retombées blanches. Ces retombées blanches ont été désignés comme du CuCN insoluble et oxamide (NC-C(O)NH_2), dont le dernier est le produit de $(\text{CN})_2$ hydrolysé. La production finale de $(\text{CN})_2$: 13%.

Exemple de comparaison 2 :

- 10 Dans un récipient à 2 l, selon US 3997653, (Labmax, Mettler) un mélange de 10,5 g de trihydrate de nitrate de cuivre (II) (95% en poids, 10,5 g, 42 mmol) a été placé avec l'acétonitrile (693 ml) et chauffé à 70°C . HCN a été ajouté en un taux de charge de 0,54 mol/h (0,35 ml/min). Un gaz marron, indiquant la présence de NO_2 , a apparu dans le mélange après l'ajout de HCN. Avec le premier dosage de HCN, l'oxygène a été ajouté à travers une fritte au
- 15 mélange à 0,34 mol/h (60 ml/min) pendant 3h. Pendant la réaction la solution bleue de la réaction est devenue une suspension verdâtre et un précipité blanc apparut. L'analyse chromatographique de gaz appliquée sur le gaz épuisé a révélé un diminution au niveau de la teneur en $(\text{CN})_2$ de 35 à 27%. Le NO , N_xO_y avec y égale $2x$, et N_2 restaient à environ 56%, la teneur en CO_2 de 7,6 à 0%, alors que la teneur en HCN augmentait de 0 à 14%. La production
- 20 finale de $(\text{CN})_2$: 38%.

Revendications

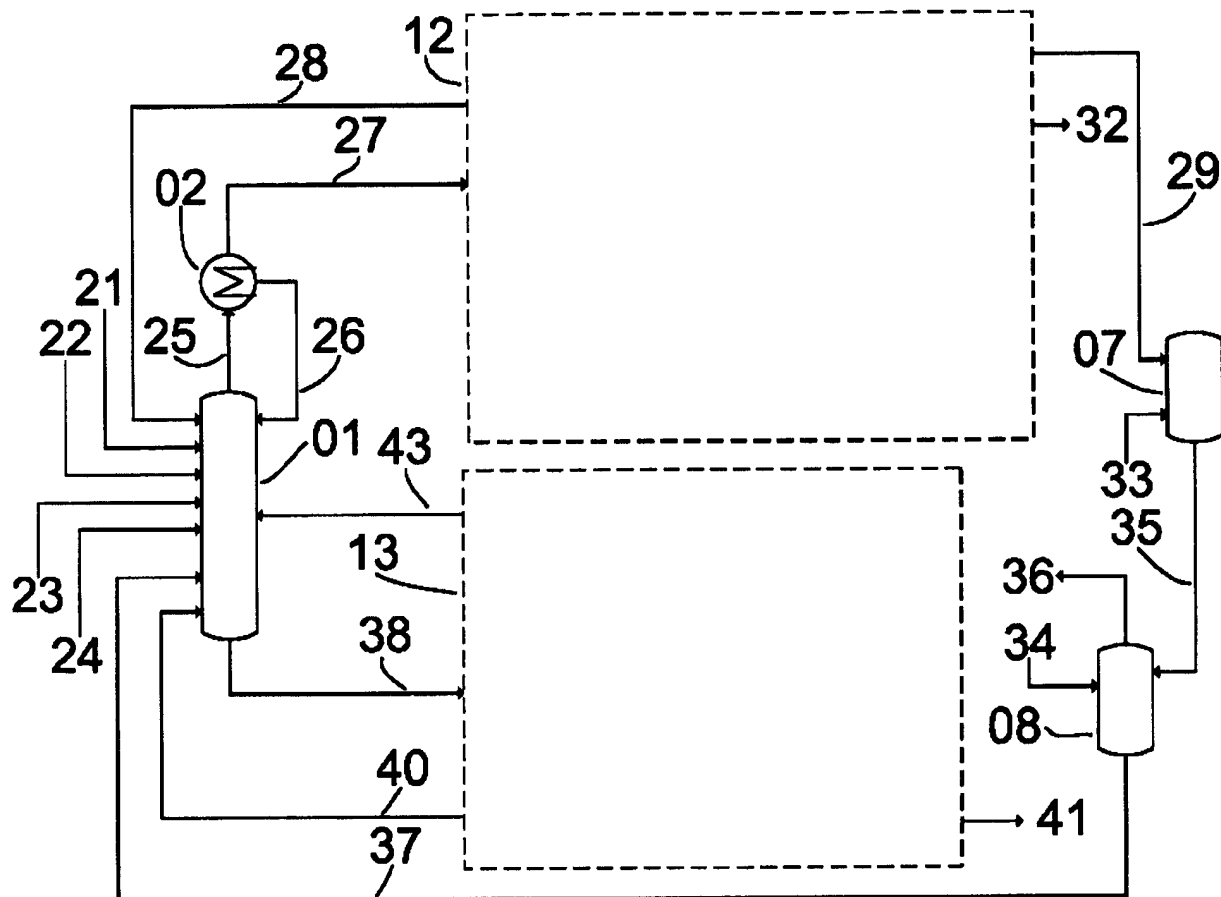
- 5 1. Un procédé de préparation d'éthane dinitrile en phase condensée par voies d'une oxydation catalytique de l'acide cyanhydrique en présence d'un catalyseur d'ion cuprique et un solvant polaire aprotique, se caractérisant par le fait que l'acide nitrique est ajouté comme étant l'oxydant unique pour le mélange de la réaction.
2. Le procédé de la revendication 1, caractérisé en ce que l'acide nitrique et l'acide cyanhydrique sont ajoutés simultanément avec un rapport molaire de 1 : 2,5 à 1 : 3,5.
- 10 3. Le procédé des revendications 1 et 2, caractérisé en ce que l'eau est présente dans la réaction en une quantité d'environ 20% en poids de la phase liquide.
4. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le solvant polaire aprotique est sélectionné à partir des nitriles organiques, des éthers, des dérivés de glycol, des composés organiques nitrés, des sulfones, des esters, des amides, des thioamides et des hétérocycles aromatiques polaires.
- 15 5. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 4, dans lequel les ions cupriques sont générés à partir d'un métal ou d'un alliage de cuivre (0) ou un complexe de cuivre (0), d'un sel de cuivre (I) ou d'un complexe de cuivre (I), d'un sel de cuivre (II) ou d'un complexe de cuivre (II), et des mélanges de ceux-ci.
- 20 6. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel l'acide cyanhydrique et l'acide nitrique sont ajoutés simultanément au mélange de la réaction.
7. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 6, dans lequel un courant de gaz de produit contenant l'éthane dinitrile et l'oxyde nitrique est continuellement enlevé du réacteur est soumis à nouveau au traitement conclusif, dans lequel l'éthane dinitrile est isolé du courant de gaz produit.
- 25 8. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 7, dans lequel l'éthane dinitrile du courant de gaz produit est absorbé dans un solvant et récupéré dans ledit solvant.
9. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 8, dans lequel l'oxyde nitrique du courant de gaz produit est ajouté à un réacteur différent où il est oxydé avec un gaz qui contient de l'oxygène pour obtenir le dioxyde d'azote, qui est absorbé dans l'eau pour obtenir l'acide nitrique, qui est recyclé à la réaction avec l'acide cyanhydrique.
- 30 10. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 9, dans lequel le procédé est effectué comme un procédé continu.
11. Le procédé de la revendication 10 dans lequel la réaction de l'acide nitrique avec l'acide cyanhydrique est effectuée dans un solvant organique qui est essentiellement le même solvant que celui utilisé pour le traitement conclusif de l'éthane dinitrile.
- 35 12. Le procédé de la revendication 11, dans lequel le solvant organique est l'acétonitrile.
13. Le procédé de l'une quelconque des revendications 1 à 12, la réaction de l'acide nitrique avec l'acide cyanhydrique est effectuée dans l'acétonitrile dans lequel l'oxyde nitrique du courant de gaz produit est ajouté à une colonne absorbante avec un acétonitrile de contre-courant, ledit acétonitrile de contre-courant absorbe principalement l'éthane dinitrile alors que l'oxyde nitrique reste sous forme de gaz, et
- 40

dans lequel, finalement, l'éthane dinitrile produit est récupéré à partir de l'acétonitrile et enlevé du procédé, alors que l'acétonitrile récupéré est recyclé au procédé.

- 14. Le procédé de la revendication 13, dans lequel l'éthane dinitrile produit est récupéré à partir de l'acétonitrile dans une colonne de désorption.
- 5 15. Le procédé de la revendication 13, dans lequel l'oxyde nitrique récupéré est oxydé en présence d'un gaz qui contient de l'oxygène pour obtenir le dioxyde d'azote, qui est mis en réaction avec de l'eau pour obtenir la colonne de l'acide nitrique. Facultativement, ledit acide nitrique recyclé est réutilisé dans le procédé.

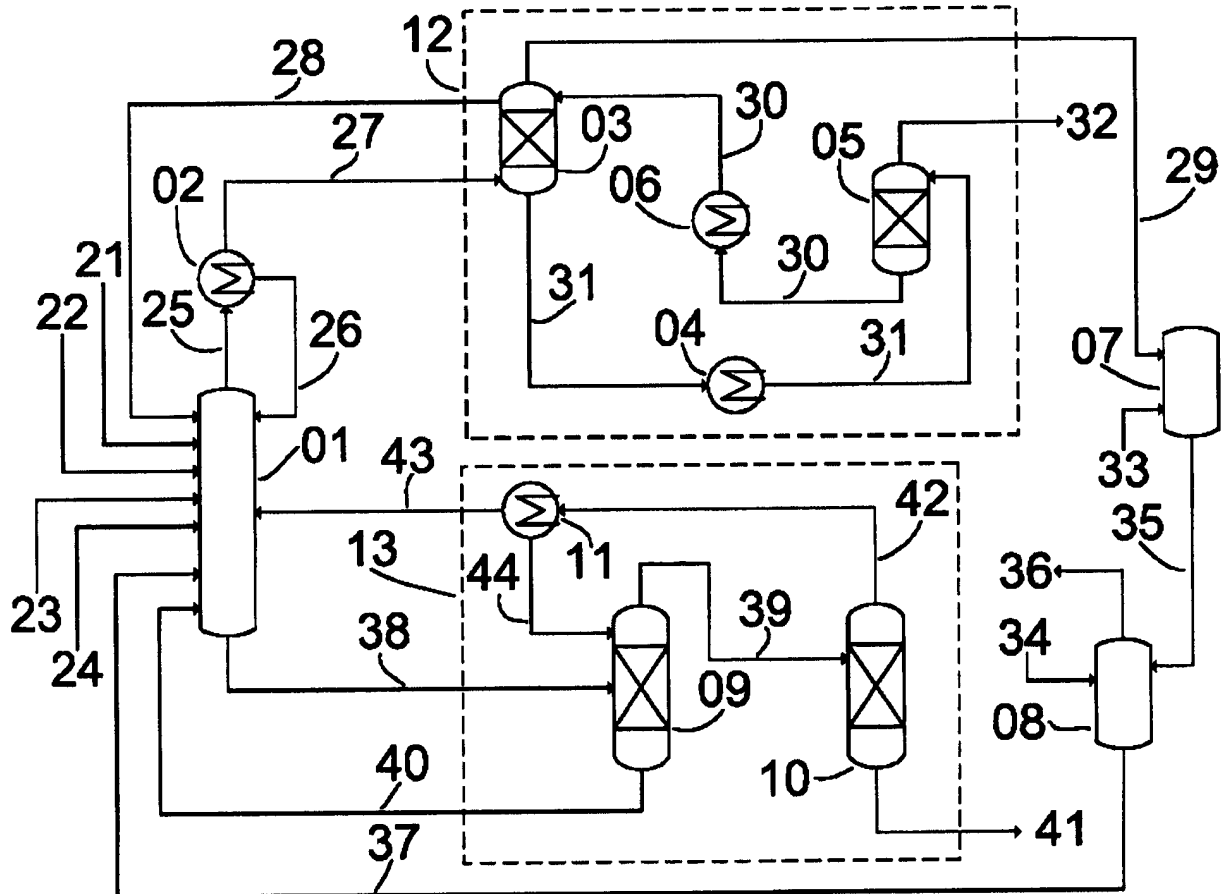


Figure 1:



A

Figure 2:



7