

(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  
14. Juni 2001 (14.06.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 01/41924 A3

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: B01J 23/34, 23/00, C07C 51/25, 45/34, 45/35, 45/33
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/12497
- (22) Internationales Anmeldedatum:  
11. Dezember 2000 (11.12.2000)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:  
199 59 873.8 10. Dezember 1999 (10.12.1999) DE
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESSELLSCHAFT [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BITTERLICH, Stefan [DE/DE]; Von-Goethe-Strasse 26b, 67246 Dirmstein (DE). VOSS, Hartwig [DE/DE]; Weinbietring 19, 67227 Frankenthal (DE). HIBST, Hartmut [DE/DE]; Branichstrasse 23, 69198 Schriesheim (DE). TENTEN, Andreas [DE/DE]; Schillerstrasse 4, 67487 Maikammer (DE). VOIGT, Ingolf [DE/DE]; An der Eule 24, 07743 Jena (DE). PIPPARDT, Ute [DE/DE]; Am Anger 18a, 07639 Weißenborn (DE).
- (54) Title: OXIDATIVE REACTIONS USING MEMBRANES THAT SELECTIVELY CONDUCT OXYGEN
- (54) Bezeichnung: OXIDATIONSREAKTIONEN UNTER VERWENDUNG VON GEMISCHTLEITENDEN, SAUERSTOFF-SELEKTIVEN MEMBRANEN
- (57) Abstract: The invention relates to reaction membranes that contain a selective oxidation catalyst disposed on a ceramic membrane that selectively conducts oxide ions and that is composed of  $(\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x)_{1-y}\text{A}_y\text{Mn}_{1-z}\text{B}_z\text{O}_{3-\delta}$ , wherein A represents Ba, Pb, Na, K, Y, an element of the lanthanide group or a combination of these elements, B represents Mg, Al, Ga, In, Sn, an element of the 3d or 4d period or a combination of these elements, x is a number of from 0.2 to 0.8, y is a number of from 0 to 0.4, z is a number of from 0 to 0.6 and  $\delta$  is a number that results from the principle of electroneutrality on the basis of x, y and z. The inventive reaction membranes are suitable for use in oxidative reactions of hydrocarbons in which oxygen is used.
- (57) Zusammenfassung: Die vorliegende Anmeldung beschreibt Reaktionsmembranen enthaltend einen selektiven Oxidationskatalysator auf einer gemischtleitenden, oxidionenselektiven keramischen Membran der Zusammensetzung  $(\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x)_{1-y}\text{A}_y\text{Mn}_{1-z}\text{B}_z\text{O}_{3-\delta}$ , wobei A für Ba, Pb, Na, K, Y, ein Element der Lanthanidengruppe oder eine Kombination dieser Elemente steht, B für Mg, Al, Ga, In, Sn, ein Element der 3d- oder der 4d-Periode oder eine Kombination dieser Elemente steht, x eine Zahl von 0,2 bis 0,8 ist, y eine Zahl von 0 bis 0,4 ist, z eine Zahl von 0 bis 0,6 ist und  $\delta$  eine Zahl ist, die sich in Abhängigkeit von x, y und z aus der Einhaltung des Elektroneutralitätsprinzips ergibt. Diese Reaktionsmembranen lassen sich vorteilhafterweise in Oxidationsreaktionen von Kohlenwasserstoffen einsetzen, bei denen Sauerstoff verwendet wird.
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- Veröffentlicht:  
— mit internationalem Recherchenbericht
- (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen  
Recherchenberichts: 25. Oktober 2001
- Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.



WO 01/41924 A3

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern. Patent Application No  
PCT/EP 00/12497

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 IPC 7 B01J23/34 B01J23/00 C07C51/25 C07C45/34 C07C45/35  
 C07C45/33

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 C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)  
 EPO-Internal, WPI Data

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 5 849 659 A (TANAKA HIROHISA ET AL) 15 December 1998 (1998-12-15) ---	
A	EP 0 641 749 A (NGK INSULATORS LTD) 8 March 1995 (1995-03-08) ---	
P,A	EP 0 963 788 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 15 December 1999 (1999-12-15) ---	
A	US 5 830 822 A (EUZEN PATRICK) 3 November 1998 (1998-11-03) -----	

Further documents are listed in the continuation of box C.  Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

<p>*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>*E* earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>*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)</p> <p>*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>*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</p> <p>*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</p> <p>*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.</p> <p>* &amp; * document member of the same patent family</p>
--	--

Date of the actual completion of the international search  <b>18 May 2001</b>	Date of mailing of the international search report  <b>31/05/2001</b>
---	---

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  <b>Thion, M</b>
--	---

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Intern: al Application No

PCT/EP 00/12497

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5849659     A	15-12-1998	JP 9271672 A	21-10-1997
		DE 19707275 A	09-10-1997
EP 0641749     A	08-03-1995	JP 2846567 B	13-01-1999
		JP 7118076 A	09-05-1995
		DE 69411645 D	20-08-1998
		DE 69411645 T	25-02-1999
		US 5489483 A	06-02-1996
EP 0963788     A	15-12-1999	CN 1235871 A	24-11-1999
		JP 2000037625 A	08-02-2000
US 5830822     A	03-11-1998	FR 2721837 A	05-01-1996
		AT 183945 T	15-09-1999
		DE 69511787 D	07-10-1999
		DE 69511787 T	10-02-2000
		DK 689870 T	13-12-1999
		EP 0689870 A	03-01-1996
		FI 953259 A	02-01-1996
		JP 8052352 A	27-02-1996
		NO 952615 A	02-01-1996

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern.iales Aktenzeichen

PCT/EP 00/12497

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**

IPK 7 B01J23/34 B01J23/00 C07C51/25 C07C45/34 C07C45/35  
C07C45/33

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

**B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 5 849 659 A (TANAKA HIROHISA ET AL) 15. Dezember 1998 (1998-12-15) ---	
A	EP 0 641 749 A (NGK INSULATORS LTD) 8. März 1995 (1995-03-08) ---	
P,A	EP 0 963 788 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 15. Dezember 1999 (1999-12-15) ---	
A	US 5 830 822 A (EUZEN PATRICK) 3. November 1998 (1998-11-03) -----	

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

18. Mai 2001

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

31/05/2001

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

Bevollmächtigter Bediensteter

Thion, M

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/12497

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5849659 A	15-12-1998	JP 9271672 A	21-10-1997
		DE 19707275 A	09-10-1997
EP 0641749 A	08-03-1995	JP 2846567 B	13-01-1999
		JP 7118076 A	09-05-1995
		DE 69411645 D	20-08-1998
		DE 69411645 T	25-02-1999
		US 5489483 A	06-02-1996
EP 0963788 A	15-12-1999	CN 1235871 A	24-11-1999
		JP 2000037625 A	08-02-2000
US 5830822 A	03-11-1998	FR 2721837 A	05-01-1996
		AT 183945 T	15-09-1999
		DE 69511787 D	07-10-1999
		DE 69511787 T	10-02-2000
		DK 689870 T	13-12-1999
		EP 0689870 A	03-01-1996
		FI 953259 A	02-01-1996
		JP 8052352 A	27-02-1996
		NO 952615 A	02-01-1996