



República Federativa do Brasil  
Ministério do Desenvolvimento, Indústria  
e do Comércio Exterior  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial.

**(21) PI 0719505-2 A2**



\* B R P I 0 7 1 9 5 0 5 A 2 \*

(22) Data de Depósito: 20/12/2007  
(43) Data da Publicação: 10/12/2013  
(RPI 2240)

(51) *Int.Cl.:*  
C07D 311/94  
C11B 9/02

---

**(54) Título:** "Processos de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado" **(57) Resumo:**

**(30) Prioridade Unionista:** 21/12/2006 US 60/876,569

**(73) Titular(es):** E.I.DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY

**(72) Inventor(es):** Henry Max Schleinitz, Keith W. Hutchenson, Leo Ernest Manzer, Mark A. Scialdone, Scott Christopher Jackson

**(74) Procurador(es):** Cristiane Araújo Rodrigues

**(86) Pedido Internacional:** PCT US2007025988 de 20/12/2007

**(87) Publicação Internacional:** WO 2008/079253de 03/07/2008

## **“PROCESSOS DE PREPARAÇÃO DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS HIDROGENADO”**

O presente pedido reivindica o benefício do Pedido Provisório Norte-Americano nº 60/876.569, depositado em 21 de dezembro de 2006, que  
5 é integralmente incorporado como parte do presente para todos os propósitos.

### **CAMPO DA INVENÇÃO**

A presente invenção refere-se à hidrogenação do óleo essencial da erva dos gatos, *Nepeta cataria*. A hidrogenação do óleo essencial fornece uma fonte enriquecida do repelente de insetos, di-hidronepetalactona.

10

### **ANTECEDENTES DA INVENÇÃO**

Demonstrou-se que di-hidronepetalactona (DHN) é um repelente de insetos eficaz, conforme discutido em US 05/112.166. Di-hidronepetalactona pode ser produzida por meio da hidrogenação de nepetalactona, um componente do óleo essencial da erva dos gatos, *Nepeta cataria* (designada a seguir óleo de erva dos gatos). Óleo de erva dos gatos pode ser purificado a partir de plantas de *N. cataria* por meio de diversos processos de isolamento, incluindo destilação a vapor (Regnier, F. E. et al, *Phytochemistry* (1967) 6: 1281-1289), extração em solvente orgânico, extração em solvente orgânico assistida por micro-ondas, extração de fluidos supercríticos, extração mecânica  
15 e enfleurage (extração fria inicial em gorduras seguida por extração com solvente orgânico). O óleo de erva dos gatos obtido desta forma pode ser utilizado na forma bruta para produzir DHN, mas a reação de hidrogenação pode ser prejudicada por componentes indesejáveis que contaminam o óleo de erva dos gatos bruto.

20

Nepetalactona foi purificada a partir de óleo de erva dos gatos por meio de cristalização (Regnier, F. E. et al, *Phytochemistry* (1967) 6: 1271-1280), mas a cristalização é cara e, em escala potencial necessária para comercialização, não é econômica. Seria altamente desejável, portanto,  
25

produzir um óleo de erva dos gatos com propriedades aprimoradas, de tal forma que possam ser produzidos altos rendimentos do repelente de insetos DHN.

#### DESCRIÇÃO RESUMIDA DA INVENÇÃO

5 Em uma realização, os processos de acordo com a presente invenção fornecem um processo de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado por meio de (a) destilação de uma quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto para produzir (i) uma fração destilada que compreende componentes voláteis retirados do óleo de erva dos gatos bruto, em que o peso  
10 da fração destilada compreende cerca de 2% a cerca de 20% do peso da quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto e (ii) uma fração de vaso; (b) contato da fração de vaso produzida na etapa (a) com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e (c) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado da  
15 etapa (b).

Em uma outra realização, os processos de acordo com a presente invenção fornecem um processo de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado por meio de (a) destilação de uma quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto que contém pelo menos cerca de 150 ppm de  
20 compostos que contêm enxofre para produzir (i) uma fração destilada que compreende pelo menos cerca de 8% em peso da quantidade de compostos que contêm enxofre na quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto e (ii) uma fração de vaso; (b) contato da fração de vaso produzida na etapa (a) com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos  
25 gatos hidrogenado; e (c) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado da etapa (b).

Em uma realização adicional, os processos de acordo com a presente invenção fornecem um processo de preparação de óleo de erva dos

gatos hidrogenado por meio de (a) contato de óleo de erva dos gatos bruto com um agente oxidante para produzir um primeiro óleo de erva dos gatos tratado; (b) separação do primeiro óleo de erva dos gatos tratado do agente oxidante para produzir um segundo óleo de erva dos gatos tratado; (c) contato do  
 5 segundo óleo de erva dos gatos tratado com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e (d) recuperação opcional do óleo de erva dos gatos hidrogenado.

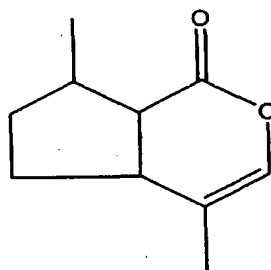
### DESCRIÇÃO DETALHADA DA INVENÇÃO

A presente invenção refere-se a métodos de tratamento do óleo  
 10 essencial da planta erva dos gatos, *Nepeta cataria*, denominada no presente óleo de erva dos gatos. O óleo de erva dos gatos tratado produzido desta forma pode ser utilizado em uma reação de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado, que é enriquecido com o repelente de insetos, di-hidronepetalactona. Métodos de tratamento de óleo de erva dos gatos incluem  
 15 destilação e/ou tratamento com um agente oxidante.

### DEFINIÇÕES

Na descrição dos processos do presente, é fornecida a estrutura de definições a seguir para certa terminologia empregada em vários pontos do relatório descritivo:

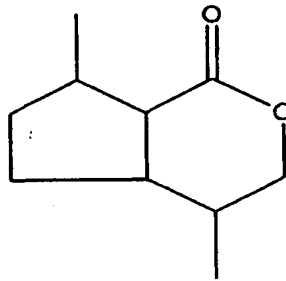
20 O termo "nepetalactona", da forma utilizada no presente, designa o composto que possui a estrutura geral da Fórmula I:



Formula I

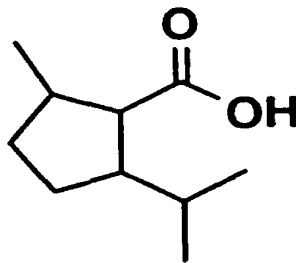
O termo "di-hidronepetalactona" ("DHN"), da forma utilizada no

presente, designa o composto que possui a estrutura geral da Fórmula II:



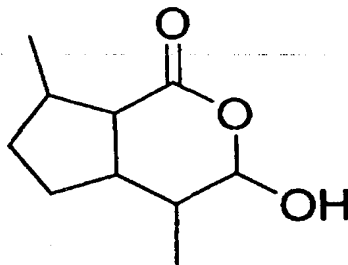
Formula II

O termo "ácido pulegânico", da forma utilizada no presente, designa o composto que possui a estrutura geral da Fórmula III:



Formula III

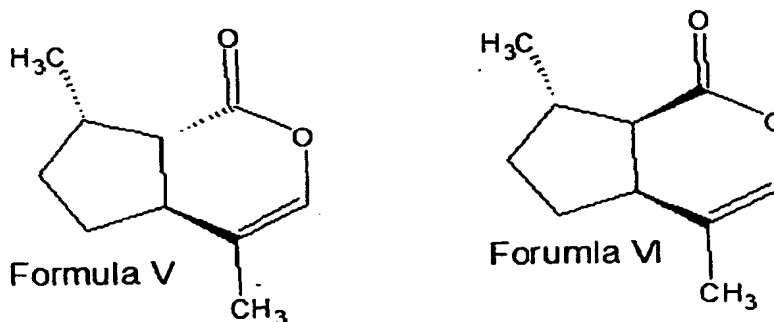
O termo "ácido nepetálico", da forma utilizada no presente,  
5 designa o composto que possui a estrutura geral da Fórmula IV:



Formula IV

A expressão "óleo de erva dos gatos bruto", da forma utilizada no presente, designa óleo de erva dos gatos que foi obtido da planta de erva dos gatos, *N. cataria*, e contém predominantemente os isômeros trans-cis e/ou cis-

trans de nepetalactona exibidos nas Fórmulas V e VI, respectivamente.



Óleo de erva dos gatos bruto pode também conter componentes estranhos tais como cariofilenos, carvonas, limonenos e outros sesquiterpenos, bem como outras impurezas não identificadas. Um ou mais destes componentes estranhos pode reduzir a eficácia da hidrogenação de óleo de erva dos gatos, conforme medido, por exemplo, pela velocidade de conversão da nepetalactona em di-hidronepetalactona. Os processos de acordo com a presente invenção podem assistir na remoção de um ou mais dentre os componentes estranhos, de forma a aumentar a hidrogenação de óleo de erva dos gatos.

Em uma realização, é fornecido no presente um processo de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado por meio de (a) destilação de uma quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto para produzir (i) uma fração destilada que compreende componentes voláteis retirados do óleo de erva dos gatos bruto, em que o peso da fração destilada compreende cerca de 2% a cerca de 20% do peso da quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto e (ii) uma fração de vaso; (b) contato da fração de vaso produzida na etapa (a) com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e (c) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado da etapa (b).

Em uma outra realização, a fração destilada contém cerca de 5% a cerca de 10% em peso da quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto.

Dependendo do processo utilizado para a obtenção de óleo de erva dos gatos de *N. cataria*, os componentes estranhos contidos em óleo de erva dos gatos podem compreender compostos que contêm enxofre, tais como sulfeto de dimetila, que pode reduzir a taxa de conversão de nepetalactonas, possivelmente envenenando o catalisador de hidrogenação. Compostos que contêm enxofre presentes no óleo de erva dos gatos bruto podem ser quantificados utilizando espectroscopia de fluorescência de raio X.

Em uma outra realização, é fornecido no presente um processo de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado por meio de (a) destilação de uma quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto que contém pelo menos cerca de 150 ppm de compostos que contêm enxofre para produzir (i) uma fração destilada que compreende pelo menos cerca de 8% em peso da quantidade de compostos que contêm enxofre na quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto e (ii) uma fração de vaso; (b) contato da fração de vaso produzida na etapa (a) com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e (c) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado da etapa (b).

Em realizações mais específicas, a fração destilada da etapa (a) compreende pelo menos cerca de 25%, pelo menos cerca de 50% ou pelo menos cerca de 75% dos compostos que contêm enxofre em peso com relação à quantidade inicial de compostos que contêm enxofre no óleo de erva dos gatos bruto.

Destilação é um processo bem conhecido (vide, por exemplo, Seader et al, *Distillation*, em *Perry's Chemical Engineers' Handbook*, sétima edição (1997), McGraw-Hill, Capítulo 13). Métodos de destilação apropriados para o processo atual incluem destilação a vácuo, destilação a vapor e destilação com solvente. Destilação a vapor e com solvente podem ser opcionalmente realizadas a vácuo. A destilação de óleo de erva dos gatos

bruto pode ser conduzida utilizando qualquer aparelho apropriado, tal como um vaso ou chaleira de resina equipada com um elemento de aquecimento, um condensador de concha e tubo e um dedo de gelo seco. A temperatura em que ocorrem a destilação e a condensação dependerá do processo utilizado. A temperatura de aquecimento, por exemplo, será mais baixa ao aplicar-se vácuo durante o processo de destilação.

Ao utilizar-se destilação a vapor, cerca de 2% a cerca de 40% de água (em peso com relação ao peso do óleo de erva dos gatos mais água) podem ser adicionados ao óleo de erva dos gatos. Em uma realização mais específica, cerca de 5% a cerca de 20% de água (em peso com relação ao peso do óleo de erva dos gatos mais água) podem ser adicionados ao óleo de erva dos gatos. Em uma realização, a mistura de óleo de erva dos gatos e água pode ser destilada sob uma temperatura de cerca de 100 °C, ou seja, o ponto de ebulição da água, sob pressão atmosférica. Em uma realização alternativa, a destilação pode ser realizada em uma pressão absoluta menor ou igual a cerca de 68,9 kPa. Em ainda outra realização, a destilação pode ser realizada em uma pressão absoluta menor ou igual a cerca de 41,4 kPa. Sob pressões mais baixas, a temperatura de destilação será mais baixa devido ao ponto de ebulição de água mais baixo sob pressão reduzida.

A destilação com solvente designa um processo de destilação por meio do qual adiciona-se um solvente para ajudar na separação de componentes de misturas com pontos de ebulição próximos. Misturas “com pontos de ebulição próximos” são misturas em que os pontos de ebulição dos componentes são similares. Na presente invenção, o solvente utilizado é tipicamente mais volátil que o óleo de erva dos gatos e, quando destilado, remove parte das substâncias voláteis presentes no óleo bruto. Preferencialmente, o solvente é um composto que é inerte para o óleo de erva dos gatos. Os solventes apropriados para a presente invenção incluem álcoois

C<sub>1</sub> a C<sub>5</sub> de cadeia linear ou ramificados. Em uma realização, o solvente é um álcool selecionado a partir do grupo que consiste de metanol, etanol, isopropanol e n-propanol.

5 Preferencialmente, a concentração de solvente inicial é de cerca de 5% a cerca de 60% em peso com relação ao peso combinado do óleo de erva dos gatos mais o solvente. Em uma outra realização, a concentração de solvente inicial é de cerca de 10% a cerca de 25% em peso com relação ao peso combinado do óleo de erva dos gatos mais o solvente. A destilação com solvente pode ser realizada sob pressão atmosférica. Em uma realização  
10 alternativa, a destilação é realizada sob uma pressão absoluta menor ou igual a cerca de 68,9 kPa. Em ainda outra realização, a destilação é realizada sob uma pressão absoluta menor ou igual a cerca de 41,4 kPa. A temperatura à qual é conduzida a destilação com solvente dependerá de parâmetros tais como o solvente utilizado, a concentração do solvente e a pressão em que é conduzida a destilação. Temperaturas típicas variam de cerca de 50 °C a cerca de 100 °C.  
15

Em uma realização adicional da presente invenção, pode-se combinar destilação com solvente com destilação a vapor. Poder-se-á conduzir, por exemplo, destilação a vapor de óleo de erva dos gatos bruto conforme descrito acima para obter um óleo de erva dos gatos do qual alguns  
20 dos componentes voláteis e a maior parte da água foram removidos. Em uma segunda etapa de destilação, este óleo de erva dos gatos destilado a vapor é colocado em contato em seguida com um solvente e realiza-se destilação com solvente conforme descrito acima. Destilação com solvente removerá componentes voláteis adicionais não removidos por meio de destilação a vapor. Além disso, a destilação com solvente pode ser utilizada para remover  
25 água residual introduzida no óleo de erva dos gatos durante destilação a vapor.

Sob temperaturas de mais de cerca de 80 °C, isômeros de nepetalactona em óleo de erva dos gatos úmido podem hidrolisar-se em

produtos indesejáveis, tais como ácido nepetálico. A velocidade de hidrólise aumenta com a temperatura até cerca de 200 °C, quando o óleo de erva dos gatos sofre degradação térmica. Seria desejável, portanto, poder conduzir a destilação de óleo de erva dos gatos sob temperatura mais baixa para evitar a hidrólise de nepetalactona. A temperatura pode ser reduzida operando-se o aparelho de destilação a vácuo. A quantidade de vácuo aplicada ao sistema dependerá dos componentes do sistema, mas prefere-se atingir um vácuo de menos de cerca de 68,9 kPa (absoluto). Em uma realização, a destilação a vácuo é realizada sob uma pressão absoluta menor ou igual a cerca de 6,89 kPa.

Em uma alternativa de destilação, é fornecido no presente um processo de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado por meio de (a) contato de óleo de erva dos gatos bruto com um agente oxidante para produzir um primeiro óleo de erva dos gatos tratado; (b) separação do primeiro óleo de erva dos gatos tratado do agente oxidante para produzir um segundo óleo de erva dos gatos tratado; (c) contato do segundo óleo de erva dos gatos tratado com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e (d) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado.

Exemplos de agentes oxidantes apropriados para uso no presente, para contato com óleo de erva dos gatos bruto, incluem  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ , que é disponível, por exemplo, em um produto tal como Bórax 20 Mule Team®. Em uma realização, pode ocorrer contato por meio de mistura do óleo de erva dos gatos com  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ , seguido por filtragem da mistura para separar o  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  do óleo de erva dos gatos oxidado. Em uma realização alternativa, o  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  pode ser colocado em uma coluna e o óleo de erva dos gatos bruto pode ser drenado através da coluna. Pode-se utilizar  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  em uma concentração de cerca de 1% a cerca de 50%

em peso com relação ao peso combinado do  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  mais o óleo de erva dos gatos. Em realizações mais específicas, pode-se utilizar  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  em concentrações de cerca de 3% a cerca de 50% em peso e cerca de 15% a cerca de 50% em peso com relação ao peso combinado do  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  mais o óleo de erva dos gatos.

Outros agentes oxidantes apropriados para uso para contato com óleo de erva dos gatos bruto incluem uma solução de peróxido de hidrogênio, que pode ser utilizada em uma concentração de cerca de 1% a cerca de 15% com relação ao peso combinado da solução de peróxido de hidrogênio mais o óleo de erva dos gatos. Foi considerada apropriada uma solução de peróxido de hidrogênio a 30%. A mistura de peróxido de hidrogênio e óleo de erva dos gatos é agitada vigorosamente e a fase de peróxido de hidrogênio aquoso é mantida em separação da fase de óleo de erva dos gatos orgânica. A fase de óleo de erva dos gatos pode ser recuperada da fase de peróxido de hidrogênio aquoso por meio de decantação. Contato de óleo de erva dos gatos bruto com  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  ou uma solução diluída de peróxido de hidrogênio pode ser realizado à temperatura ambiente (cerca de 25 °C).

Ozônio é ainda outro agente oxidante alternativo, que pode ser utilizado por meio de agitação vigorosa do óleo de erva dos gatos bruto na presença de ozônio.

Em realizações alternativas adicionais, pode ser realizada uma etapa de contato de óleo de erva dos gatos bruto com um agente oxidante antes da realização de uma etapa de destilação, conforme descrito acima.

Óleo de erva dos gatos bruto pode ser obtido por meio de um fornecedor tal como George Thacker Sons (Alberta, Canadá) ou pode ser obtido a partir de material vegetal de erva dos gatos por meio de métodos conhecidos, tais como destilação (Regnier, F. E. et al, *Phytochemistry* (1967) 6: 1281-1289). Um método específico de obtenção de óleo de erva dos gatos

apropriado para uso no presente inclui as etapas de (a) contato de material vegetal de *Nepeta cataria* com vapor para formar uma mistura volatilizada que compreende óleo de erva dos gatos e água; (b) condensação da mistura volatilizada formada na etapa (a) para formar uma mistura líquida que  
5 compreende óleo de erva dos gatos e água em que o óleo de erva dos gatos é dissolvido em água; (c) contato da mistura líquida formada na etapa (b) com sal para fornecer uma mistura na qual óleo de erva dos gatos e sal sejam ambos dissolvidos em água e em que:

(i) a solubilidade de óleo de erva dos gatos na solução de  
10 água e sal é pelo menos cerca de 50% menor que a solubilidade de óleo de erva dos gatos em água; e/ou

(ii) a razão  $[(\rho_{\text{óleo de erva dos gatos}} - \rho_{\text{solução aquosa}})/\mu_{\text{solução aquosa}}]$ , em que  $\rho$  é a densidade,  $\mu$  é a viscosidade e a solução aquosa é a solução de água e sal, é menor ou igual a cerca de -0,05;

15 para fornecer na mistura uma fase de óleo de erva dos gatos que é separada de uma fase de solução de sal aquosa; e (d) recuperação da fase de óleo de erva dos gatos.

Segundo este método, o material vegetal é embalado em um autoclave. A tampa do autoclave é fechada e vedada para o autoclave e para  
20 um condensador. Pode-se fornecer vapor para a destilação do material vegetal de erva dos gatos por qualquer meio apropriado. Em uma realização, é fornecido vapor para o autoclave por meio de injeção direta através de um condutor de injeção. Em uma realização alternativa, o vapor pode ser obtido por meio de adição de água ao autoclave e ebulição da água na presença do  
25 material vegetal. Este último método é indicado como utilizando um autoclave com ignição direta.

O óleo volatilizado que é produzido quando o vapor entra em contato com o material vegetal é conduzido em um duto, junto com o

vapor, para um condensador. Água de resfriamento, de qualquer fonte de água apropriada, flui através do condensador. O seu efeito de resfriamento permite que o vapor d'água e o vapor de óleo de resfriamento condensem-se para formar a mistura condensada líquida heterogênea. O condensador é configurado de forma a permitir que a gravidade drene a água condensada e o óleo de erva dos gatos para fora do condensador e para dentro de uma lata de coleta. A água e o óleo de erva dos gatos são transportados em um duto para o interior da lata de coleta utilizando opcionalmente membranas internas, de forma a produzir uma zona de tranquilidade para permitir a separação efetiva do óleo e da água. Tipicamente, a temperatura do condensado é controlada sob uma temperatura modesta, cerca de 40 a 60 °C, para permitir a separação efetiva do óleo e da água na zona de tranquilidade da lata de separação.

A mistura condensada líquida heterogênea que compreende óleo de erva dos gatos e água pode ser em seguida colocada em contato com sal, tal como permitindo-se que toda a mistura entre em contato com sal. Em uma realização, um material poroso tal como serapilheira, papel filtro, pano de filtragem (tal como pano de prato) ou uma tela fina, é colocado em um funil e o sal é colocado sobre o material poroso. A mistura heterogênea entra em contato com o sal e flui através do funil para o interior da lata de coleta. A adição de sal causa a separação da mistura condensada líquida heterogênea em uma fase de óleo de erva dos gatos (fase superior na lata de coleta) e uma fase de solução de sal aquosa (fase inferior na lata de coleta). A fase de óleo de erva dos gatos pode ser recuperada por meio de decantação da fase superior. Os sais que são apropriados para o processo incluem os sais de sulfato, nitrato e fosfato dos Grupos 1 e 2 da Tabela Periódica dos Elementos.

Este método também fornece um método de redução da

quantidade de óleo de erva dos gatos no esgoto por meio de reciclagem da fase de água condensada de volta para o autoclave. Este método, com ou sem reciclagem, pode ser conduzido a vácuo. O vácuo fornece a vantagem de permitir a operação do processo de destilação sob temperatura reduzida. A  
5 quantidade de vácuo aplicada ao sistema dependerá dos componentes do sistema, mas prefere-se atingir uma pressão absoluta de cerca de 70 kPa a cerca de 13 kPa.

Após a destilação e/ou o contato com um agente oxidante, a fração de vaso que contém óleo de erva dos gatos ou o segundo óleo de erva  
10 dos gatos tratado, conforme descrito acima, pode ser utilizada em uma reação de hidrogenação para obter óleo de erva dos gatos hidrogenado. A reação de hidrogenação pode ser conduzida na presença de hidrogênio sob uma temperatura de cerca de -10 °C a cerca de 200 °C. A pressão de hidrogênio para a reação é geralmente de cerca de 0,1 MPa a cerca de 20,7 MPa. O  
15 tempo, temperatura, pressão de hidrogênio, velocidade de fluxo e alimentação podem ser ajustados, de acordo com princípios conhecidos, para obter conversão ideal de hidrogenação de óleo de erva dos gatos utilizando um dado catalisador. Uma reação de hidrogenação apropriada é a descrita na Patente Norte-Americana nº 7.067.677 (que é integralmente incorporada como parte do  
20 presente para todos os propósitos). É descrita no presente a hidrogenação de nepetalactona na presença de um metal catalítico que não é níquel, platina nem paládio. O processo pode ser conduzido sob uma temperatura de cerca de 25 °C a cerca de 250 °C sob pressão de hidrogênio de cerca de 0,1 MPa a cerca de 20 MPa.

25 Outros processos apropriados de fabricação de uma dihidronepetalactona incluem um processo de (a) contato, opcionalmente na presença de um solvente, de uma mistura que compreende trans-cis nepetalactona e cis-trans nepetalactona com pelo menos um primeiro

catalisador de hidrogenação sólido e hidrogênio em uma primeira temperatura ou temperaturas até que a concentração de trans-cis nepetalactona seja reduzida em pelo menos 50% em peso do peso da trans-cis nepetalactona no início da reação para formar uma primeira mistura de produtos; (b) separação  
5 opcional da primeira mistura de produtos do pelo menos um primeiro catalisador de hidrogenação sólido para formar uma primeira mistura de produtos separada; (c) contato da primeira mistura de produtos ou primeira mistura de produtos separada com pelo menos um segundo catalisador de hidrogenação sólido e hidrogênio em uma segunda temperatura ou  
10 temperaturas para formar uma segunda mistura de produtos; e (d) separação da mencionada segunda mistura de produtos da etapa (c) do pelo menos um primeiro catalisador de hidrogenação sólido e/ou do pelo menos um segundo catalisador de hidrogenação sólido. O pelo menos um primeiro catalisador de hidrogenação sólido e o mencionado pelo menos um segundo catalisador de  
15 hidrogenação sólido são selecionados independentemente e compreendem metal catalítico selecionado a partir de elementos do grupo que consiste de ferro, rutênio, rênio, cobre, ósmio, cobalto, ródio, irídio, níquel, paládio, platina, ligas ou seus compostos; e suas combinações. Em uma realização, a etapa (a) é realizada sob uma ou mais temperaturas de cerca de 0 °C a cerca de 100 °C.  
20 Em uma outra realização, a etapa (c) é realizada sob uma ou mais temperaturas de cerca de 50 °C a cerca de 150 °C.

A reação de hidrogenação pode ser conduzida em bateladas em um único reator, em bateladas sequenciais em uma série de reatores, em zonas de reação dentro de um ou mais reatores ou em modo contínuo  
25 em qualquer equipamento empregado costumeiramente para processos contínuos.

Após a reação de hidrogenação, o óleo de erva dos gatos hidrogenado pode ser recuperado da mistura de reação por meio de métodos

conhecidos de separação, tais como decantação ou filtragem. Dihidronepetalactona pode ser recuperada do óleo de erva dos gatos hidrogenado, tal como por meio de cromatografia de coluna.

Os efeitos e atributos vantajosos dos processos do presente podem ser observados em uma série de exemplos, conforme descrito abaixo. As realizações dos processos nos quais se baseiam os exemplos são apenas representativas e a seleção dessas realizações para ilustrar a presente invenção não indica que materiais, condições, disposições, abordagens, reagentes, etapas ou métodos não descritos nesses exemplos não são apropriados para a prática desses processos, nem que o objeto não descrito nesses exemplos é excluído do escopo das reivindicações anexas e seus equivalentes.

#### EXEMPLOS

São utilizadas as abreviações a seguir: GC é cromatografia de gases; GC-MS é cromatografia de gases-espectrometria de massa; FID é detector de ionização de chamas; NMR é ressonância magnética nuclear; °C é graus centígrados; MPa é megaPascal; kPa é quiloPascal; Pa é Pascal; rpm é revoluções por minuto; ml é mililitro; CMO é óleo de erva dos gatos; % em peso é percentual em peso; TOS é tempo no fluxo; NPL é nepetalactona; DHN é dihidronepetalactona; h é hora; conc. é concentração; conv. é conversão; temp. é temperatura; °C é grau centígrado; kg é quilograma; XRF é espectroscopia de fluorescência de raio X; ppm é parte por milhão.

Óleo de erva dos gatos, que foi extraído por meio de destilação a vapor de material herbáceo da erva dos gatos *Nepeta cataria*, foi obtido por meio da George Thacker Sons (Alberta, Canadá). Etanol, hexanos e isopropanol, cloreto de sódio e peróxido de hidrogênio foram obtidos por meio da Sigma-Aldrich (St. Louis MO). Bórax 20 Mule Team® ( $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ ) foi obtido de uma mercearia, mas  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$  é disponível por meio da

Sigma-Aldrich. O catalisador ESCAT 142 (5% Pd/C) foi obtido por meio da Engelhard Corp. (Iselin NJ).

#### **DETERMINAÇÃO DE COMPONENTES DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS E DOS SEUS**

##### **COMPOSTOS HIDROGENADOS**

5 Amostras foram diluídas com uma solução padrão interna e injetadas em uma coluna DB FFAP utilizando um GC HP5890 (Agilent Technologies, Palo Alto CA) equipado com um detector de FID. As temperaturas do detector e de injeção foram de 250 °C. A temperatura da coluna foi elevada linearmente de 50 °C para 250 °C por vinte minutos e  
10 mantida em 250 °C pela duração da condução. Utilizou-se uma entrada de modo de divisão. Fatores de reação relativa e identificação de picos dos principais componentes foram determinados utilizando padrões de calibragem de nepetalactona, di-hidronepetalactona, ácido pulegânico e ácido nepetálico.

15

##### **DETERMINAÇÃO DO TEOR DE ENXOFRE**

Enxofre foi quantificado utilizando espectroscopia de fluorescência de raio X (XRF) (sistema XRF dispersivo de comprimento de onda Panalytical modelo 2400 (Panalytical Inc., Tempe AZ)).

##### **REAÇÕES DE HIDROGENAÇÃO**

20

A velocidade de hidrogenação foi medida conduzindo-se uma reação de hidrogenação de teste de pequena escala em um reator de autoclave em bateladas agitado a 50 ml carregado com uma solução de óleo de erva dos gatos e um catalisador em pó, conforme descrito abaixo. O reator foi vedado e, em seguida, mantido em fluxo e evacuado com nitrogênio por  
25 várias vezes para remover o oxigênio. Estes fluxos foram seguidos por dois fluxos rápidos com hidrogênio para minimizar o nitrogênio residual no reator. O reator foi equipado com um agitador de captura de gases acoplado magneticamente que girou a cerca de 1000 rpm durante a reação. A

temperatura do reator foi controlada por meio de fluxo de uma mistura de propileno glicol e água de um banho de recirculação através de uma bobina externa ou do uso de um aquecedor de faixas elétricas externo. Hidrogênio foi continuamente alimentado ao reator no transcurso da condução para manter uma pressão especificada à medida que hidrogênio era consumido pela reação. Após a reação, o reator foi resfriado por meio da bobina de resfriamento externa e ventilado. Conduziu-se análise de produto por meio de cromatografia de gases (GC) conforme descrito acima utilizando 1,2-dibromobenzeno como o padrão interno adicionado após a reação. Condições de reação adicionais e os perfis de reação correspondentes que exibem conversão de nepetalactonas em di-hidronepetalactonas e subprodutos chave são fornecidos abaixo para os exemplos individuais.

#### **EXEMPLO 1 (EXEMPLO COMPARATIVO)**

#### **HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA EM ÓLEO DE ERVA DOS GATOS NÃO TRATADO (CMO)**

A reação foi conduzida utilizando ESCAT 142. A carga do catalisador foi de 10% em peso com relação ao peso de CMO, a pressão de hidrogênio foi de 8,27 MPa e a concentração de CMO foi de 50% em peso em etanol. A reação foi conduzida a 15°C.

**TABELA 1**

#### **HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA**

TOS	Conv. NPL	Rend. DHN	Rend. ácido pulegânico	Rend. ácido neptálico
(h)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)
0,17	1,6	**	**	5,9
0,50	8,5	97,3	3,11	5,9

TOS	Conv. NPL	Rend. DHN	Rend. ácido pulegânico	Rend. ácido neptálico
(h)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)
1,00	18,2	98,3	1,8	5,9
1,5	38,4	98,1	1,9	6,2
2,0	47,6	98,1	1,9	5,9

\*\* Baixo demais para medição precisa.

### EXEMPLO 2

#### DESTILAÇÃO DE SOLVENTE DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS UTILIZANDO 21% EM

#### PESO DE SOLVENTE

5 Este exemplo demonstra o efeito do tratamento de óleo de erva dos gatos bruto por meio de destilação com solvente utilizando etanol sobre a taxa de hidrogenação de nepetalactona (NPL) em dihidronepetalactona (DHN). Adicionou-se etanol a óleo de erva dos gatos bruto até cerca de 21% em peso. Os voláteis, incluindo o etanol, foram

10 extraídos utilizando um flash de estágio único (nenhuma coluna de destilação presente) a 1,38 kPa (65 °C) por cerca de trinta minutos, quando não foi observado o surgimento superior de componente volátil adicional (ou seja, não foi observado nenhum condensado adicional (utilizando um sifão de gelo seco)). Cerca de 6% em peso do óleo de erva dos gatos bruto

15 original foram perdidos na parte superior na destilação. O material remanescente foi utilizado em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito no Exemplo Comparativo 1. A Tabela 2 exibe a velocidade de hidrogenação desse óleo tratado como a conversão de NPL em função do tempo de hidrogenação ou tempo em fluxo (TOS). Após duas

20 horas de hidrogenação, a conversão da nepetalactona aumentou de 47,6%,

observada no Exemplo Comparativo 1, para 82,1% para o óleo de erva dos gatos submetido a destilação com solvente. Não foi observado nenhum aumento apreciável dos subprodutos indesejados, ácido nepetálico e ácido pulegânico.

5

**TABELA 2****HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA**

TOS (h)	Conv. NPL (% em peso)	Rend. DHN (% em peso)	Rend. ácido pulegânico (% em peso)	Rend. ácido nepetálico (% em peso)
0,17	29,2	98,7	1,32	5,9
0,50	48,0	98,6	1,41	5,9
1,00	69,3	98,2	1,83	5,9
1,5	78,8	97,9	2,14	6,2
2,0	82,1	97,8	2,27	5,9

**EXEMPLO 3****DESTILAÇÃO DE SOLVENTE DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS EM 50% EM PESO DE SOLVENTE**

10

Este exemplo demonstra o efeito do tratamento de óleo de erva dos gatos bruto por meio de destilação com solvente com etanol sobre a taxa de hidrogenação de nepetalactona (NPL) em di-hidronepetalactona (DHN). Adicionou-se etanol a óleo de erva dos gatos bruto até cerca de 50% em peso. Isso é substancialmente mais que o utilizado no Exemplo 2. Os voláteis, incluindo o etanol, foram extraídos utilizando um flash de estágio único a 7,58 kPa (65 °C) por cerca de trinta minutos, quando não foi observado o surgimento superior de componentes voláteis adicionais. Cerca de 1% em peso do óleo de

15

erva dos gatos bruto original foi perdido na parte superior na destilação. O material remanescente foi utilizado em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito no Exemplo Comparativo 1. A Tabela 3 exibe a velocidade de hidrogenação desse óleo tratado como a conversão de NPL em função do tempo de hidrogenação ou tempo em fluxo (TOS). Após duas horas de hidrogenação, a conversão da nepetalactona aumentou de 47,6%, observada no Exemplo Comparativo 1, para 83,5% para o óleo destilado com solvente. Isso foi feito sem aumento aparente do ácido nepetálico nem perda de rendimento para ácido pulegâmico. O óleo de erva dos gatos bruto continha um teor de enxofre inicial de 278 ppm; o teor do enxofre na amostra utilizado para hidrogenação foi de 215 ppm.

**TABELA 3****HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA**

TOS (h)	Conv. NPL (% em peso)	Rend. DHN (% em peso)	Rend. ácido pulegâmico (% em peso)	Rend. ácido neptálico (% em peso)
0,17	20,3	96,8	3,7	6,1
0,50	42,4	99,5	0,6	6,1
1,00	60,6	97,8	2,4	6,1
1,5	76,3	97,6	2,6	5,8
2,0	83,5	97,4	2,8	6,2

**EXEMPLO 4**

**DESTILAÇÃO A VAPOR DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS, SEGUIDA POR DESTILAÇÃO  
COM ISOPROPANOL**

Este exemplo demonstra o efeito do tratamento de óleo de erva dos gatos bruto por meio de destilação a vapor, seguida por destilação com isopropanol, sobre a taxa de hidrogenação de nepetalactona (NPL) em DHN. Óleo de erva dos gatos (2400 gramas; lote 2003 da George Thacker Sons) e água deionizada (1440 gramas) foram combinados em uma chaleira de resina aquecida de quatro litros equipada com um condensador de concha e tubo e um dedo frio com gelo seco. Esta chaleira de resina foi equipada com um controle de vácuo. O vácuo foi controlado sob pressão de 6,9 kPa mediante o aquecimento da chaleira utilizando um cobertor de aquecimento elétrico. A temperatura da água e óleo de erva dos gatos foi controlada a 39 até 45 °C. Água e parte do óleo de erva dos gatos foram extraídas, condensadas utilizando o condensador de concha e tubo e o dedo frio e drenadas periodicamente do receptor condensador. Após cerca de sete horas, a maior parte da água foi destilada e adicionou-se um total de cerca de 400 ml de isopropanol ao óleo de erva dos gatos remanescente na chaleira de resina. A destilação prosseguiu a cerca de 6,9 kPa, mas a temperatura da mistura de óleo de erva dos gatos e isopropanol foi elevada para 72 a 80 °C para facilitar a destilação. A destilação foi conduzida por uma hora adicional. Pelos últimos dez a quinze minutos, o vácuo foi ajustado em 752 Pa para ajudar a retirar qualquer isopropanol residual. Cerca de 4,5% em peso da carga inicial do óleo foram destilados desta forma. Realizou-se um total de sete destilações desta forma e o óleo de erva dos gatos destilado obtido por meio da destilação foi combinado para gerar um total de cerca de 14,7 kg de óleo de erva dos gatos destilado. Utilizou-se uma pequena parte em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito no Exemplo Comparativo 1. A Tabela 4 exibe a velocidade de hidrogenação desse óleo tratado como a conversão de NPL em função do tempo de hidrogenação ou tempo em fluxo (TOS). Após 1,75 horas de hidrogenação, a conversão da nepetalactona foi de 82,2%, que é substancialmente mais alta que a conversão aproximadamente ao mesmo tempo no Exemplo 1. Isso foi feito sem aumento aparente do ácido

nepetálico nem perda de rendimento para ácido pulegânico. O óleo de erva dos gatos bruto continha um teor de enxofre inicial de 278 ppm; o teor do enxofre na amostra utilizada para hidrogenação foi de 205 ppm.

**TABELA 4****HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA**

TOS	Conv. NPL	Rend. DHN	Rend. ácido pulegânico	Rendimento de ácido nepetálico
(h)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)
0,17	16,02	99,36	0,66	6,51
0,5	50,17	98,17	1,88	6,60
1	74,31	97,81	2,22	6,40
1,75	82,19	97,11	2,86	6,66
2,75	84,47	97,53	2,52	6,45

**EXEMPLOS 5 A 11****HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA**

Os Exemplos 5 a 11 ilustram a hidrogenação de nepetalactona em óleo de erva dos gatos, em que o óleo de erva dos gatos bruto foi tratado conforme indicado.

As reações de hidrogenação foram conduzidas utilizando o catalisador ESCAT 142. A carga do catalisador foi de 10% em peso com relação ao peso o óleo de erva dos gatos, a pressão de hidrogênio foi de 3,45 MPa e a concentração de CMO foi de 50% em peso em etanol. As reações foram conduzidas a 25 °C. Os resultados encontram-se resumidos na Tabela 5.

O Exemplo 5 é um Exemplo Comparativo para a velocidade de hidrogenação de nepetalactona em óleo de erva dos gatos não tratado em di-hidronepetalactona.

Para o Exemplo 6, CMO bruto foi tratado por meio de destilação de solvente com etanol. Adicionou-se etanol a óleo de erva dos gatos bruto até cerca de 20% em peso. Os voláteis, incluindo o etanol, foram extraídos utilizando um flash de estágio único a cerca de 6,895 kPa (65 °C) por cerca de trinta minutos, quando não foi observado o surgimento superior de componentes voláteis adicionais. Cerca de 6% em peso do óleo de erva dos gatos bruto original foram perdidos na parte superior na destilação. O material remanescente foi utilizado em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito acima.

Para o Exemplo 7, CMO bruto foi tratado por meio de destilação de solvente com etanol. Adicionou-se etanol (100 gramas) a 300 gramas de óleo de erva dos gatos bruto. Os voláteis, incluindo o etanol, foram extraídos utilizando um flash de estágio único a 6,895 kPa a cerca de 448 Pa (60 °C) por cerca de trinta minutos, quando não foi observado o surgimento superior de componentes voláteis adicionais. Cerca de 4,5 gramas do óleo de erva dos gatos bruto original foram perdidos na parte superior na destilação. O material remanescente foi utilizado em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito acima.

Para o Exemplo 8, CMO bruto foi tratado por meio do seu contato com uma solução diluída de peróxido de hidrogênio. Uma solução a 30% de  $H_2O_2$  (12 gramas) foi diluída com 108 gramas de água deionizada e essa solução foi misturada com 120 gramas de CMO bruto mais 8,5 gramas de cloreto de sódio. A mistura resultante foi agitada vigorosamente em um funil separador. A camada aquosa foi removida e o CMO tratado foi seco e filtrado sobre dez gramas de peneiras moleculares 13X da Sigma-Aldrich (St. Louis MO). Este tratamento gerou 108 gramas de CMO tratado. Este material foi utilizado em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito acima.

Para o Exemplo 9, CMO bruto foi tratado por meio do seu contato com um leito fixo de Bórax (Bórax 20 Mule Team®). Colocou-se lã de vidro no fundo de uma coluna de vidro. Bórax (50 gramas) foi carregado nessa coluna. CMO bruto (142,4 gramas) foi drenado através dessa  
 5 coluna. Este tratamento gerou 111 gramas de CMO tratado. Este material foi utilizado em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito acima.

Para o Exemplo 10, CMO bruto foi destilado sob alto vácuo de 15 a 25 torr absolutos. CMO bruto (19,05 kg) foi carregado ao vaso de destilação.  
 10 Esta destilação foi conduzida sob vácuo de 25 a 15 torr. A temperatura do vaso aumentou de 120 °C até uma temperatura final de 147 °C. Os voláteis foram recolhidos de um dedo frio com gelo seco. Foram recolhidas sete frações de destilado (8,34 kg). A terceira fração foi utilizada em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito acima. O óleo de erva dos gatos bruto continha um  
 15 teor de enxofre inicial de 278 ppm; o teor do enxofre na terceira fração utilizada para hidrogenação foi de 49 ppm.

**TABELA 5****HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA**

>>	Exemplo 5 Comparativo CMO não tratado	Exemplo 6 CMO destilado em 20% de etanol	Exemplo 7 CMO destilado em 50% de etanol	Exemplo 8 Óleo tratado com H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Exemplo 9 Óleo tratado com bórax	Exemplo 10 Óleo destilado em alto vácuo (trajeto fechado)
TOS	Conversão de NPL	Conversão de NPL	Conversão de NPL	Conversão de NPL	Conversão de NPL	Conversão de NPL
(h)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)
0,08	5,3	22,4	18,7	38,9	3,0	42,2
0,25	13,9	55,4	40,5	79,3	29,8	74,5

>>	Exemplo 5 Comparativo CMO não tratado	Exemplo 6 CMO destilado em 20% de etanol	Exemplo 7 CMO destilado em 50% de etanol	Exemplo 8 Óleo tratado com H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Exemplo 9 Óleo tratado com bórax	Exemplo 10 Óleo destilado em alto vácuo (trajeto fechado)
0,50	27,9	76,8	58,0	88,0	60,1	83,3
1,00	46,9	84,3	70,5	92,8	76,8	87,6
2,00	65,3	89,1	78,6	97,0	83,9	92,3
Rend, DHN após duas horas (% em peso)	98,3	94,9	97,7	94,5	98,3	97,0

Para o Exemplo 11, CMO bruto foi colocado em contato com um agente oxidante. Peróxido de hidrogênio (solução a 30%; 50 gramas) foi misturado com 450 gramas de água deionizada. Esta mistura (500 gramas) foi combinada com 51 gramas de cloreto de sódio e 500 gramas de óleo de erva dos gatos bruto que contém um teor de enxofre de cerca de 592 ppm. Esta mistura foi agitada vigorosamente em um funil separador, mantida em sedimentação e, em seguida, a fase aquosa foi separada da fase orgânica por meio de decantação. A fase orgânica foi seca sobre peneiras moleculares 13X e foram recuperados 467,4 gramas de óleo de erva dos gatos. O teor de enxofre desse óleo tratado com peróxido seco foi de 252 ppm. Isso representa uma redução de 57% do teor de enxofre do óleo. Uma amostra desse óleo tratado foi utilizada em um teste de hidrogenação realizado conforme descrito acima.

Os resultados são exibidos na Tabela 6. O óleo tratado com H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> exibiu aumento substancial da conversão da nepetalactona após duas horas de

hidrogenação (83,7% contra 25,4% para o óleo não tratado).

**TABELA 6**

**HIDROGENAÇÃO DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS**

TOS (h)	Conv. NPL não tratado (% em peso)	Conv. NPL tratado com H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (% em peso)
0,25	3,2	42,0
0,50	7,4	62,4
1,00	15,3	77,1
2,00	25,4	83,7

**EXEMPLO 12**

**DESTILAÇÃO A VAPOR DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS**

5

Este exemplo demonstra o efeito do tratamento de óleo de erva dos gatos bruto por meio de destilação a vapor sobre a taxa de hidrogenação de nepetalactona (NPL) em DHN. Óleo de erva dos gatos bruto (705 gramas) mais 400 gramas de água foram carregados em uma chaleira de resina de quatro litros equipada com um condensador. A chaleira de resina foi aquecida até o seu ponto de ebulição sob pressão atmosférica por quatro horas. Parte da água e do óleo foi destilada e condensada. Foram recolhidos água (136 gramas) e 30 gramas de orgânicos (em peso da fase) no receptor de destilado. O óleo de erva dos gatos remanescente na chaleira de resina foi decantado da fase de água e utilizado em um teste de hidrogenação. A Tabela 6 exibe a velocidade de hidrogenação desse óleo tratado como a conversão de NPL em função do tempo de hidrogenação ou tempo em fluxo (TOS). Após duas horas de hidrogenação, a conversão da nepetalactona foi de 89,2% para esse óleo destilado a vapor. Os dados da Tabela 7 podem ser comparados com os dados

10

15

da Tabela 8 no Exemplo 13 para determinar óleo de erva dos gatos não tratado.

### CONDIÇÕES DE HIDROGENAÇÃO

A reação foi conduzida utilizando o catalisador ESCAT 142. A carga do catalisador foi de 10% em peso com relação ao peso de óleo de erva dos gatos, a pressão de hidrogênio foi de 0,21 MPa e a concentração de CMO foi de 10% em peso em hexano. A reação foi conduzida a 25 °C.

**TABELA 7**

### HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA

TOS (h)	Conv. NPL (% em peso)	Rend. DHN (% em peso)	Rend. ácido pulegânico (% em peso)	Rend. ácido neptálico (% em peso)
0,17	46,5	**	**	10,2
0,50	80,7	~100	~0	9,7
1,00	86,3	~100	~0	9,0
1,5	87,5	~100	~0	9,8
2,0	89,2	~100	~0	9,5

10

\*\* Baixo demais para medição precisa.

### EXEMPLO 13 (EXEMPLO COMPARATIVO)

### HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA

Óleo de erva dos gatos bruto foi hidrogenado sob as condições descritas no Exemplo 12. Para esse óleo não tratado, houve apenas uma conversão de 64,8% do NPL após duas horas.

15

**TABELA 8**

### HIDROGENAÇÃO DE NEPETALACTONA

TOS	Conv. NPL	Rend. DHN	Rend. ácido pulegânico	Rend. Ácido neptálico
(h)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)	(% em peso)
0,17	7,3	84,9	**	1,11
0,50	23,5	94,5	4,9	1,11
1,00	43,4	95,6	4,0	1,13
1,5	56,3	95,4	4,2	1,13
2,0	64,8	95,7	4,0	1,16

Quando for indicada no presente uma faixa de valores numéricos, a faixa inclui as suas extremidades e todos os números inteiros individuais e frações dentro da faixa, também incluindo todas as faixas mais estreitas ali formadas por todas as diversas combinações possíveis dessas extremidades e números inteiros e frações internas para formar subgrupos do grupo maior de valores dentro da faixa indicada da mesma forma como se cada uma dessas faixas mais estreitas fosse explicitamente indicada. Quando uma faixa de valores numéricos for indicada no presente como sendo maior que um valor indicado, a faixa, entretanto, é finita e delimitada na sua extremidade superior por um valor que é operativo dentro do contexto da presente invenção, conforme descrito no presente. Ao indicar-se uma faixa de valores numéricos no presente como sendo menos de um valor indicado, a faixa, entretanto, é limitada na sua extremidade inferior por um valor diferente de zero.

No presente relatório descritivo, a menos que indicado explicitamente em contrário ou indicado em contrário pelo contexto de uso, quantidades, tamanhos, faixas, formulações, parâmetros e outras quantidades e características indicadas no presente, particularmente quando modificados

pela expressão "cerca de", podem, mas não necessitam ser exatos e podem também ser aproximados e/ou maiores ou menores (conforme o desejado) que o indicado, refletindo tolerâncias, fatores de conversão, arredondamentos, erros de medição e similares, bem como a inclusão em um valor indicado dos valores fora dela que possuem, dentro do contexto da presente invenção, equivalência funcional e/ou operativa para o valor indicado.

No presente relatório descritivo, a menos que indicado explicitamente de outra forma ou indicado em contrário pelo contexto de uso, em que uma realização do objeto do presente é indicada ou descrita como compreendendo, incluindo, contendo, possuindo, sendo composta de ou sendo constituída de ou por certas características ou elementos, uma ou mais características ou elementos além das explicitamente indicadas ou descritas podem estar presentes na realização. Uma realização alternativa do objeto do presente, entretanto, pode ser descrita ou indicada como consistindo essencialmente de certas características ou elementos, em que características ou elementos de realizações que alterariam materialmente o princípio de operação ou as características diferenciadoras da realização não estão ali presentes. Uma realização alternativa adicional do objeto do presente pode ser indicada ou descrita como consistindo de certas características ou elementos e, nessa realização ou em suas variações insubstanciais, apenas as características ou os elementos indicados ou descritos especificamente estão presentes.

### REIVINDICAÇÕES

1. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS HIDROGENADO, que compreende:

5 (a) destilação de uma quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto para produzir (i) uma fração destilada que compreende componentes voláteis retirados do óleo de erva dos gatos bruto, em que o peso da fração destilada compreende cerca de 2% a cerca de 20% do peso da quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto e (ii) uma fração de vaso;

10 (b) contato da fração de vaso produzida na etapa (a) com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e

(c) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado da etapa (b).

15 2. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 1, em que o peso da fração destilada compreende cerca de 5% a cerca de 10% do peso da quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto.

20 3. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 1, em que a etapa de destilação (a) compreende uma etapa de destilação com solvente ou de destilação a vapor seguida por destilação com solvente, em que, no início da destilação com solvente, o peso do solvente compreende cerca de 5% a cerca de 60% do peso combinado de óleo de erva dos gatos mais solvente.

25 4. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 1, em que a etapa de destilação (a) compreende uma etapa de destilação com solvente ou de destilação a vapor seguida por destilação com solvente, em que um solvente compreende um álcool C<sub>1</sub> a C<sub>5</sub> de cadeia linear ou ramificado.

5. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 1, que compreende adicionalmente uma etapa, antes da destilação, de contato da quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto com um agente oxidante

selecionado a partir de  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ , peróxido de hidrogênio e suas misturas.

6. PROCESSO, de preparação de óleo de erva dos gatos hidrogenado, que compreende:

5 (a) destilação de uma quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto que contém pelo menos cerca de 150 ppm de compostos que contém enxofre para produzir (i) uma fração destilada que compreende pelo menos cerca de 8% em peso da quantidade de compostos que contém enxofre na quantidade inicial de óleo de erva dos gatos bruto e (ii) uma fração de vaso;

10 (b) contato da fração de vaso produzida na etapa (a) com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e

(c) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado da etapa (b).

15 7. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 6, em que a etapa de destilação (a) compreende uma etapa de destilação com solvente ou de destilação a vapor seguida por destilação com solvente, em que, no início da destilação com solvente, o peso do solvente compreende cerca de 5% a cerca de 60% do peso combinado de óleo de erva dos gatos mais solvente.

20 8. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 6, em que a etapa de destilação (a) compreende uma etapa de destilação com solvente ou de destilação a vapor seguida por destilação com solvente, em que um solvente compreende um álcool  $\text{C}_1$  a  $\text{C}_5$  de cadeia linear ou ramificado.

25 9. PROCESSO DE PREPARAÇÃO DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS HIDROGENADO, que compreende:

(a) contato de óleo de erva dos gatos bruto com um agente oxidante para produzir um primeiro óleo de erva dos gatos tratado;

(b) separação do primeiro óleo de erva dos gatos tratado do

agente oxidante para produzir um segundo óleo de erva dos gatos tratado;

(c) contato do segundo óleo de erva dos gatos tratado com hidrogênio e um catalisador de hidrogenação para produzir óleo de erva dos gatos hidrogenado; e

5 (d) opcionalmente, recuperação do óleo de erva dos gatos hidrogenado.

10. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 9, em que o agente oxidante é selecionado a partir do grupo que consiste de  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ , peróxido de hidrogênio, ozônio e suas misturas.

**RESUMO****“PROCESSOS DE PREPARAÇÃO DE ÓLEO DE ERVA DOS GATOS  
HIDROGENADO”**

São descritos métodos de tratamento de óleo de erva dos gatos.

- 5 O óleo de erva dos gatos tratado pode ser utilizado para a produção de óleo de erva dos gatos hidrogenado, que é enriquecido no repelente de insetos, dihidronepetalactona.