

ELJÁRÁS ETILÉN TÍPUSÚ TELÍTETLEN KÖTÉST  
TARTALMAZÓ SZERVES VEGYÜLETEK  
CIÁNHIDROGÉNEZÉSÉRE

5

Kivonat

A találmány etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó szerves vegyületek legalább egy nitril-funkcióscsoportot tartalmazó vegyületekké történő ciánhidrogénezésére vonatkozik.

- 10 Közelebbről, a találmány legalább egy etilén típusú kötést tartalmazó szerves vegyületnek egy átmenetifémet és egy szerves foszfor ligandumot tartalmazó katalizátor jelenlétében hidrogén-cianiddal végzett ciánhidrogénezésére vonatkozik. A
- 15 szerves foszfor-ligandum egy monofoszfanoorbodién szerkezetű vegyület. A találmány közelebbről butadién adiponitrillé történő ciánhidrogénezésére vonatkozik.

$27 + 2 = 29$

felel

WA

**ELJÁRÁS ETILÉN TÍPUSÚ TELÍTETT KÖTÉST  
TARTALMAZÓ SZERVES VEGYÜLETEK  
CIÁNHIDROGÉNEZÉSÉRE**

5 A találmány etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó szerves vegyületnek legalább egy nitril-funkcióscsoportot tartalmazó vegyületté történő ciánhidrogénezésére vonatkozik.

A találmány közelebbről diolefinek, például butadién vagy helyettesített olefinek, például alkénnitrilek, például pentén-nitrilek ciánhidrogénezésére vonatkozik.

Az 1 599 761 számú francia szabadalmileírásban nitrilek előállítására vonatkozó eljárást ismertettek, amelynek során hidrogén-cianidot addicionáltak legalább egy etilén típusú kettős-kötést tartalmazó szerves vegyületekre nikkell katalizátor és triaril-foszfitt jelenlétében. Ezt a reakciót oldószer jelenlétében vagy távollétében végezték.

Amikor a szakirodalomban ismert eljárásban oldószert használtak, ez általában szénhidrogén típusú oldószer volt, mint a benzol vagy a xilolok, vagy egy nitrilszármazék, például acetónitril volt.

Katalizátorként olyan nikkell komplexet használtak, amely ligandumként például foszfineket, arszenieket, sztíbineket, foszfitokat, arzeniteket vagy antimonitokat tartalmazott.

Ebben a szabadalmi leírásban a katalizátor aktiválására promoterként bórvegyület vagy fémsó, általában egy Lewis-sav alkalmazását javasolták.

A 2 338 253 számú francia szabadalmi leírásban legalább egy

etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó vegyület ciánhidrogénezését írták le egy átmenetifém-vegyület, előnyösen nikkel-, palládium- vagy vasvegyület és egy szulfonált foszfinszármazék jelenlétében.

- 5 Az ezen szabadalmi leírásban ismertetett szulfonált foszfinek szulfonált triarilfoszfinek, közelebbről szulfonált trifenilfoszfinek voltak.

Az eljárás a ciánhidrogénezés pontosan végrehajtható, különösen butadién- és penténitrilek esetében, továbbá a katalizátor-oldat egyszerű ülepítéssel könnyen elválasztható, ennek  
10 következtében megelőzhető a katalizátorként használt fémeket tartalmazó szennyvíz és hulladék keletkezése.

Azonban kutatások folytak olyan új katalizátorrendszerekre vonatkozóan, amelyek mind a katalizátor aktivitása, mind stabilitása szempontjából hatékonyabbak.  
15

Találmányunk egyik célja új ligandumcsalád kutatása, amellyel olyan átmenetifémeket tartalmazó katalizátorrendszerek állíthatók elő, amelyek az ismert rendszerekhez képest nagyobb aktivitást mutatnak.

- 20 Tehát találmányunkkal eljárást biztosítunk legalább egy etilén típusú kötést tartalmazó szerves vegyületek ciánhidrogénezésére, egy átmenetifémet és egy szerves foszfor-ligandumot tartalmazó katalizátorrendszer jelenlétében hidrogén-cianiddal végzett reakcióval, amelyben ligandumként egy (I) általános  
25 képletű foszfinszármazékot használunk, amely (I) általános képletben

E jelentése oxigén- vagy kénatom;

n jelentése 0 vagy 1;

- R<sub>1</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub> és R<sub>6</sub> jelentése azonosan vagy különbözően  
30 hidrogénatom; 1-40 szénatomos adott esetben helyettesített,

- telített vagy telítetlen, alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncá adott esetben egy heteroatommal van megszakítva; adott esetben helyettesített monociklusos vagy policiklusos, telített, telítetlen vagy aromás, karbociklusos vagy heterociklusos csoport; vagy telített vagy telítetlen, alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncá adott esetben egy heteroatommal van megszakítva és egy fent meghatározott karbociklusos vagy heterociklusos csoportot hordoz, amely csoport adott esetben helyettesített;
- 10 vagy  $R_4$  és  $R_5$  a hozzájuk kapcsolódó szénatommal együtt 5-7 szénatomos, adott esetben helyettesített, telített vagy telítetlen karbociklusos monociklust képez;
- $R_2$  jelentése hidrogénatom vagy X csoport;
- $R_3$  jelentése X csoport vagy Y csoport;
- 15 ahol az  $R_2$  és  $R_3$  helyettesítők közül az egyik és csak az egyik jelentése X csoport;
- X jelentése 2-20 szénatomos monociklusos vagy biciklusos, aromás, karbociklusos vagy heterociklusos csoport; 1-alkenil-csoport, amely 2-12 szénatomos szénhidrogén láncában adott esetben egy vagy több további telítetlen kötést tartalmaz; 1-alkinil-csoport, amely 2-12 szénatomos szénhidrogén láncában adott esetben egy vagy több további telítetlen kötést tartalmaz; vagy ciano-, (1-12 szénatomos alkil)karbonil-, (3-18 szénatomos aril)karbonil-, (1-12 szénatomos alkoxi)karbonil-, (6-18 szénatomos ariloxi)karbonil-, karbamoil-, (1-12 szénatomos alkil)karbamoil- vagy di(1-12 szénatomos alkil)karbamoil-csoport; és
- 20 Y jelentése az  $R_1$  helyettesítő jelentésében meghatározott csoportok;
- 30  $R_7$  jelentése az  $R_1$ ,  $R_4$ ,  $R_5$  és  $R_6$  helyettesítők jelentésé-

ben megadott csoportok vagy szénhidrogén-csoport, amely egy karbonil-funkcióscsoportot vagy egy (a) vagy (b) általános képletű csoportot tartalmaz, ahol

5 A jelentése hidrogénatom; 1-10 szénatomos alkil-; vagy 6-10 szénatomos aril- vagy (6-10 szénatomos aril)(1-10 szénatomos alkil)-csoport, amelynek aril része adott esetben egy vagy több csoporttal, mégpedig 1-6 szénatomos alkil-, 1-6 szénatomos alkoxi- vagy trifluor-  
10 metilcsoporttal, halogénatommal, di(1-6 szénatomos alkil)-amino-, (1-6 szénatomos alkoxi)karbonil-, karbamoil-, (1-6 szénatomos alkil)-aminokarbonil- vagy di(1-6 szénatomos alkil)-aminokarbonil-csoporttal helyettesített;

-Ar<sub>1</sub>-Ar<sub>2</sub>- képletű csoport jelentése

• (c) képletű kétértékű csoport, amelyben az egyes  
15 fenilcsoportok adott esetben egy vagy több alábbiakban meghatározott Z csoporttal helyettesítettek; vagy

• (d) képletű kétértékű csoport, amelyben az egyes fenilcsoportok adott esetben egy vagy több alábbiakban meghatározott Z csoporttal helyettesítettek;

20 Z jelentése 1-6 szénatomos alkil-, 1-6 szénatomos alkoxi- vagy trifluorometil-csoport, halogénatom, (1-6 szénatomos alkoxi)-karbonil-, di(1-6 szénatomos alkil)amino-, (1-6 szénatomos alkil)aminokarbonil- vagy di(1-6 szénatomos alkil)-aminokarbonil-csoport;

25 R<sub>8</sub> és R<sub>9</sub> jelentése azonosan vagy különbözően helyettesített vagy helyettesítetlen arilcsoport.

A foszfinvegyületek ezen családját a 2 785 610 számú és a 2 785 611 számú francia szabadalmi leírásban ismertették. Az említett dokumentumokban példákat mutattak be ezen vegyü-  
30 leték előállítására is.

Az ismertetett vegyületek közül különösen előnyösek az olyan (I) általános képletű vegyületek, amelyek képletében

$R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_4$ ,  $R_5$  és  $R_6$  jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom vagy T csoport, utóbbi jelentése:

- 5        - 1-12 szénatomos, telített vagy telítetlen alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncá adott esetben egy heteroatommal, mégpedig oxigén-, nitrogén- vagy kénatommal van megszakítva;
- 10       - 3-8 szénatomos, monociklusos karbociklusos csoport, amely telített vagy gyűrűjében 1 vagy 2 telítetlen kötést tartalmaz;
- 15       - telített vagy telítetlen biciklusos karbociklusos csoport, amely 2 egymáshoz kapcsolódó egyszerű gyűrűt tartalmaz, ahol mindegyik egyszerű gyűrű adott esetben egy vagy két telítetlen kötést és 3-8 szénatomot tartalmaz;
- 20       - mono- vagy biciklusos 6-10 szénatomos aromás karbociklusos csoport;
- 25       - telített, telítetlen vagy aromás 5- vagy 6-tagú monociklusos heterociklusos csoport, amely 1-3 heteroatomot, mégpedig nitrogén-, oxigén- és/vagy kénatomot tartalmaz;
- 30       - telített, telítetlen vagy aromás biciklusos heterociklusos csoport, amely két egymással kondenzált 5- vagy 6-tagú egyszerű gyűrűt tartalmaz, ahol mindegyik egyszerű gyűrű 1-3 heteroatomot, mégpedig egymástól függetlenül oxigén-, nitrogén- és/vagy kénatomot tartalmaz; vagy
- 1-12 szénatomos, telített, telítetlen alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncá egy fent

meghatározott karbociklusos vagy heterociklusos monociklusos csoportot hordoz,

ahol a T helyettesítő adott esetben helyettesített.

X jelentése előnyösen 2-6 szénatomos alkenil-, 2-6 szénatomos alkinil-, fenil-, naftil-, tienil-, furil-, pirrolil-, imidazolil-,  
5 pirazolil-, tiazolil-, oxazolil-, piridil-, pirazinil-, piridazinil-, izotiazolil-, izoxazolil-, benzofuril-, benztienil-, indolil-, izoindolil-, indolizinil-, indazolil-, purinil-, kinolil-, izokinolil-, benzoxazolil-, benzotiazolil- vagy pteridinil-csoport.

10 Az utóbbiak közül a T helyettesítőt tartalmazó vegyületek adott esetben a következőkkel vannak helyettesítve: 1-6 szénatomos alkil-, 2-6 szénatomos alkenil-, 1-6 szénatomos alkoxi- vagy 2-6 szénatomos acilcsoport,  $-R_a-COOR_b$ ,  $-R_a-NO_2$ ,  $-R_a-CN$  általános képletű csoport, di(1-6 szénatomos alkil)-amino-,  
15 di(1-6 szénatomos alkil)-amino(1-6 szénatomos alkil)-csoport,  $-O-CF_3$  képletű csoport,  $-R_a-CO-N(R_b)_2$ ,  $-R_a-hal$  vagy  $-R_aCF_3$  általános képletű csoport, ahol  $R_a$  jelentése kötés vagy 1-6 szénatomos alkiléncsoport,  $R_b$  jelentése azonosan vagy különbözően hidrogénatom vagy 1-6 szénatomos alkilcsoport és hal  
20 jelentése halogénatom, vagy

(e) általános képletű csoport, amelynek képletében  $R_d$  jelentése 1-6 szénatomos alkil-, 2-6 szénatomos alkenil-, 1-6 szénatomos alkoxi-, 2-6 szénatomos acil-, di(1-6 szénatomos alkil)-amino-, di(1-6 szénatomos alkil)-amino(1-6 szénatomos alkil)-  
25 csoport vagy  $-O-CF_3$ - képletű csoport vagy  $-R_a-COOR_b$ ,  $-R_a-NO_2$ ,  $-R_a-CN$ ,  $-R_a-CO-N(R_b)_2$ ,  $-R_a-hal$  vagy  $-R_a-CF_3$  általános képletű csoport, ahol  $R_a$ ,  $R_b$  és hal jelentése a fent meghatározott;

m értéke 0 és 5 közötti egész szám;

30  $R_c$  jelentése kötés, 1-6 szénatomos alkiléncsoport, oxigénatom, kénatom,  $-CO-$ ,  $-COO-$  vagy  $-SO_2-$  képletű vagy  $-NR_b-$ ,

-CO-NR<sub>b</sub>-, -NR<sub>b</sub>-CO- általános képletű csoport, ahol R<sub>b</sub> jelentése a fent meghatározott.

A találmányunk szerinti vegyületek közül előnyösként megemlíthetők a (II) és (III) képletű vegyületek.

- 5 Átmenetifémként átmenetifém-vegyületeket, előnyösen nikkelt-, palládium- vagy vasvegyületeket használunk.

A fent említett vegyületek közül a legelőnyösebbek a nikkelvegyületek.

- 10 A következő vegyületeket említjük meg, anélkül, hogy találmányunkat ezekre korlátoznánk:

nulla oxidációs állapotú nikkelt tartalmazó vegyületek, mint a kálium-tetracianonikkelát (K<sub>4</sub>[Ni(CN)<sub>3</sub>]), a bisz(akrilnitril)-nikkel(0), a bisz(1,5-ciklooktadién)-nikkel vagy az Va csoportból származó ligandumokat tartalmazó származékok, mint a

15 tetrakisz(trifenilfoszfin)-nikkel(0);

nikkel-vegyületek, például karboxilátok (különösen az acetát), karbonát, bikarbonát, borát, bromid, klorid, citrát, tiocianát, cianid, formiát, hidroxid, hidrofoszfit, foszfit, foszfát és ezek származékai, jodid, nitrát, szulfát, szulfid, arilszulfonátok vagy

20 alkilszulfonátok.

Amikor a használt nikkelvegyületben a nikkelt oxidációs állapota 0-nál nagyobb, a reakcióközegbe a nikkelt redukálószert adagolunk, amely redukálószer előnyös módon a reakció körülményei között a nikkelt reakcióba lép. Ez a redukálószer

25 szerves vagy szervetlen redukálószer lehet. Megemlíthetők a következők, anélkül, hogy találmányunkat ezekre korlátoznánk: NaBH<sub>4</sub>, cinkpor, magnézium, KBH<sub>4</sub> és bórhidridek.

Amikor a nikkelvegyületben a nikkelt oxidációs száma 0, a fent említett típusú redukálószer szintén adagolható azonban

30 ezek adagolása nem fontos.

Amikor vasvegyületet használunk, ugyanezek a redukálószeresek megfelelőek.

Palládium esetében a redukálószeresek a reakcióközeg komponensei mellett (foszfin, oldószer, olefin) adagolhatók.

5 A jelen eljárásban előnyösebben alkalmazott, legalább egy etilén típusú kettőskötést tartalmazó szerves vegyületek a diolefinok, például a butadién, az izoprén, az 1,5-hexadién vagy az 1,5-ciklooktadién, az etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó alifás nitril-származékok, előnyösen lineáris pen-  
10 ténitril-származékok, mint a 3-penténitril vagy a 4-penténitril, a monoolefinok, mint a sztírol, a metilsztírol, a vinilnaftalin, a ciklohexén vagy a metilciklohexén, továbbá néhány ilyen vegyület keveréke.

A penténitrilek bizonyos mennyiségben, általában kis mennyiségben egyéb vegyületeket is tartalmazhatnak, mint a 2-metil-  
15 3-butén-nitril, a 2-metil-2-butén-nitril, a 2-pentén-nitril, a valeritril, az adiponitril, a 2-metil-glutaronitril, a 2-etil-szukcinnitril vagy a butadién, amelyek például a butadién telítetlen nitrilekké történő ciánhidrogénezést megelőző reakcióból  
20 származnak.

Ennek oka, hogy a butadién ciánhidrogénezése folyamán a lineáris pentén-nitrilek mellett nem jelentős mennyiségű 2-metil-3-butén-nitril és 2-metil-2-butén-nitril képződik.

A találmányunk szerinti ciánhidrogénezési reakcióban használt  
25 katalizátorrendszer a reakcióközegbe történő bevezetés előtt állítható elő, például oly módon, hogy az (I) általános képletű foszfinvegyülethez önmagában vagy oldószerben oldva megfelelő mennyiségű átmenetifém-vegyületet és adott esetben redukálószerrel adunk. A katalizátorrendszer "in situ" is előállítható a ciánhidrogénező reakcióközegben a foszfinhez egy át-  
30 menetifém-vegyület adagolásával, a hidrogén-ciánhiddal reak-

cióba lépő vegyület hozzáadása előtt vagy után.

A. nikkelvegyület vagy egy másik használt átmenetifém-vegyület mennyiségét a hidrogén-cianiddal reakcióba lépő vagy izomerizálendő szerves vegyület móljára számítva  $10^{-4}$  mól és  
5 1 mól közötti, előnyösen 0,005 mól és 0,5 mól közötti mennyiségű nikkelnak vagy egyéb átmenetifémnek megfelelően választjuk meg.

Az alkalmazott (I) általános képletű foszfinszármazék mennyiségét 1 mól átmenetifémre vonatkoztatva 0,5 és 500 közötti,  
10 előnyösen 2 és 100 közötti mólszámú ilyen vegyületnek megfelelően választjuk meg.

Habár a reakciót általában oldószer nélkül végezzük, előnyösen inert szerves oldószert használhatunk.

Ilyen oldószerre vonatkozó példaként megemlíthetjük az aromás,  
15 más, alifás vagy cikloalifás szénhidrogéneket.

A hidrogén-cianidos reakciót általában  $10\text{ C}^\circ$  és  $200\text{ C}^\circ$  közötti hőmérsékleten, előnyösen  $30\text{ C}^\circ$  és  $120\text{ C}^\circ$  közötti hőmérsékleten végezzük.

A találmányunk szerinti eljárást végezhetjük folyamatosan vagy  
20 szakaszosan.

Az alkalmazott hidrogén-cianid előállítható fém-cianidokból, előnyösen nátrium-cianidból vagy ciánhidrinekből, mint az aceton-ciánhidrin.

A hidrogén-cianidot gáz formában vagy folyadék formájában  
25 vezethetjük be a reaktorba. Előzőleg szerves oldószerben is oldhatjuk.

Szakaszos kivitelezés esetén a gyakorlatban a reaktort előzőleg egy inert gázzal (például nitrogénnel vagy argonnal) átbuborékolgatjuk, ezután bemérjük a különböző alkotórészeket,  
30 például a foszfint, az átmenetifém-vegyületet, az esetleg al-

kalmazott redukálószer és az adott esetben jelenlévő oldószert tartalmazó oldat egészét vagy egy részét, vagy ezeket az alkotórészeket bemérhetjük külön. Ezután a reaktort általában a meghatározott hőmérsékletre melegítjük, majd hozzáadjuk a hidrogén-cianiddal reagáló vegyületet. Magát a hidrogén-cianidot előnyösen folyamatosan és változatlan sebességgel adagoljuk.

Amikor a reakció teljesen végbemegy (amelynek előrehaladást kivett minták vizsgálatával követjük), a reakciókeveréket lehűtés után elvonjuk és a reakcióterméket például desztillálással izoláljuk.

A találmányunk szerinti, etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó vegyület javított ciánhidrogénezési eljárása különösen az etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó fent említett nitril-származék ciánhidrogénezésére vonatkozik, amely reakciót hidrogén-cianiddal végezzük, továbbá a találmányunk szerinti katalizátorrendszerben legalább egy Lewis-savat tartalmazó kokatalizátort használunk.

A javított változatban etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó vegyületként általában olyan vegyület használhatunk, amelyet az alapeljárásban említettünk. Azonban ezt különösen előnyösen etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó alifás nitrilek dinitril-származékainak lineáris penténitrilekké, például 3-pentén-nitrillé, 4-pentén-nitrillé és ezek keverékévé történő ciánhidrogénezési reakciójában használjuk.

A penténitrilek meghatározott mennyiségben, általában kis mennyiségben egyéb vegyületeket is tartalmazhatnak, mint a 2-metil-3-butén-nitril, a 2-metil-2-butén-nitril, a 2-pentén-nitril, a valeronitril, az adiponitril, a 2-metil-glutaronitril, a 2-etil-szukcinnitril vagy a butadién, amelyek a butadién ciánhidrogénezését és/vagy a 2-metil-3-butén-nitril pentén-nitrillekké

történő izomerizálódását megelőző reakcióból származnak.

A kokatalizátorként használt Lewis-savak – különösen etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó alifás nitrilek ciánhidrogénezése esetében – javíthatják a kapott dinitrilek linearitását, azaz a lineáris dinitrilek összes képződött dinitrilre vonatkoztatott százalékos mennyiségét és/vagy növelhetik a katalizátor aktivitását és élettartamát.

"Lewis-sav" kifejezésen a jelen szövegben az általános meghatározásnak megfelelően elektronpárokat felvevő vegyületeket értünk.

Lewis-savként előnyösen a szakirodalomban ismert vegyületeket alkalmazzuk [Olah, G. A., "Friedel-Crafts and Related Reactions", I. kötet, 191-197. old. (1963)].

A találmányunk szerinti eljárásban kokatalizátorként alkalmazott Lewis-savként a Periódusos Rendszer Ib, IIb, IIIa, IIIb, IVa, IVb, Va, Vb, VIb, VIIb vagy VIII csoportjába tartozó elemek vegyületeit használhatjuk. Ezek a vegyületek általában sók, mégpedig előnyösen halogenidok, például kloridok vagy bromidok, szulfátok, szulfonátok, halogénszulfonátok, perhalogénalkilszulfonátok, előnyösen fluoralkilszulfonátok és perfluoralkilszulfonátok, karboxilátok vagy foszfátok.

Lewis-savakként megemlíthetők a következők, azonban találmányunk nem korlátozódik ezekre: cink-klorid, cink-bromid, cink-jodid, mangán-klorid, mangán-bromid, kadmium-klorid, kadmium-bromid, ón-klorid, ón-bromid, ón-szulfát, ón-tartarát, indium-trifluormetilszulfonát, ritkaföldfémek, például lantán, cérium, prazeodímium, neodímium, samárium, európium, gadolinium, terbium, diszprozium, holmium, erbium, túlium, itterbium, lutécium kloridjai vagy bromidjai, vagy kobalt-klorid vagy ittrium-klorid.

Természetesen Lewis-savak keverékét is alkalmazhatjuk.

A Lewis-savak közül különösen előnyösek a cink-klorid, a cink-bromid, az ón-klorid, az ón-bromid és a cink-klorid/ón-klorid keveréke.

A Lewis-sav kokatalizátort általában az átmenetifém-vegyület, 5  
közelebbről a nikkelvegyület móljára vonatkoztatva 0,01 mól és 50 mól közötti, előnyösen 1 mól és 10 mól közötti mennyiségben használjuk.

A találmányunk szerinti alapeljárás kivitelezése során a Lewis-sav jelenlétében végzett ciánhidrogénezésnél alkalmazott katalizátor-oldat előállítható a reakcióközegbe történő bevezetés 10  
előtt, például oly módon, hogy az (I) általános képletű foszfinszármazékot tartalmazó reakcióközeghez hozzáadjuk a megfelelő mennyiségű átmenetifém-vegyületet, a Lewis-savat és adott esetben a redukálószeret. A katalizátor-oldat "in situ" 15  
is előállítható ezen különböző alkotórészek egyszerű összekeverésével.

A találmányunk szerinti ciánhidrogénezési eljárás körülményei között, különösen ha a ciánhidrogénezést legalább egy (I) általános képletű foszfinszármazék és legalább egy átmenetifém-vegyületet tartalmazó 20  
fent ismertetett katalizátor jelenlétében végezzük, a találmányunk szerinti eljárást végezhetjük hidrogén-cianid távollétében is oly módon, hogy a 2-metil-3-butén-nitrilt pentén-nitrilekké, általánosabban fogalmazva, az elágazó telítetlen nitrileket lineáris telítetlen nitrilekké izomerizáljuk.

25 A találmányunk szerinti izomerizációnak alávetett 2-metil-3-butén-nitril alkalmazható önmagában vagy más vegyületekkel alkotott keverék formájában.

Tehát a 2-metil-3-butén-nitril a következőkkel alkotott keverékben alkalmazható: 2-metil-2-butén-nitril, 4-pentén-nitril, 3-pentén-nitril, 2-pentén-nitril, butadién, adiponitril, 2-metil-glutaronitril, 2-etil-szukcinnitril vagy valeronitril. 30

Különösen előnyös, ha a butadiént legalább egy (I) általános képletű foszfinszármazék és legalább egy átmenetifém-vegyület, előnyösebben 0 oxidációs állapotú nikkelt tartalmazó, fent meghatározott vegyület jelenlétében hidrogén-cianiddal végzett ciánhidrogénezéséből származó reakciókeverékkel kezeljük.

Ezen előnyös változat esetében a butadién ciánhidrogénezési reakciójában a már jelenlévő katalizátorrendszerhez elegendő hidrogén-cianidot vezetni az izomerizációs reakció lejátszódásához.

Ebben a változatban – amennyiben szükséges – a reaktort inert gáz alkalmazásával enyhén szellőztethetjük, mint a nitrogén vagy az argon, például az esetleg még jelenlévő hidrogén-cianid kihajtása céljából.

Az izomerizációs reakciót általában 10 °C és 200 °C közötti, előnyösen 60 °C és 120 °C közötti hőmérsékleten végezzük.

Előnyös esetben az izomerizációt közvetlenül a butadién ciánhidrogénezési reakciója után végezzük, és az izomerizációt előnyösen ugyanazon a hőmérsékleten végezzük, mint a ciánhidrogénezést.

Az etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó vegyületek ciánhidrogénezési eljárása esetén az izomerizációnál használt katalizátorrendszer a reakcióközegbe történő adagolás előtt előállítható például oly módon, hogy az (I) általános képletű foszfinszármazékot tartalmazó reakcióközeghez megfelelő mennyiségű átmenetifém-vegyületet és adott esetben redukálószer adunk. A katalizátorrendszer "in situ" is előállítható ezen különböző alkotórészek egyszerű összekeverésével. Az átmenetifém-vegyület, előnyösen a nikkelvegyület mennyisége és az (I) általános képletű foszfinszármazék mennyisége a ciánhidrogénezési reakcióban használttal azonos.

Habár az izomerizációs reakciót általában oldószer nélkül végezzük, előnyös lehet egy olyan inert oldószer adagolása, amely az ezután következő extrakció oldószere. Különösen ez a helyzet, amikor a butadién ciánhidrogénezési reakciójában  
5 olyan oldószert használunk, amelyet az izomerizációs reakció közegének előállítására használunk. Ilyen oldószerek például a ciánhidrogénezésnél fent említettek.

Azonban a dinitril-származékokat előállíthatjuk egy olefinnek, például butadiénnek a találmányunk szerinti katalizátorrendszer alkalmazásával végrehajtott ciánhidrogénezésével, egy a  
10 telítetlen nitrilek előállítási lépéseit és a fenti izomerizációs lépést magában foglaló eljárással, ahol a telítetlen nitrilek dinitrilekké történő ciánhidrogénezési reakcióját végezhetjük a találmányunk szerinti katalizátorrendszerrel vagy bármilyen  
15 más, ezen reakcióra vonatkozóan már ismert egyéb katalizátorrendszerrel.

Hasonló módon, az olefinek telítetlen nitrilekké történő ciánhidrogénezési reakcióját és az utóbbi izomerizációját végezhetjük a találmányunk szerintitől eltérő katalizátorrendszerrel  
20 is, ahol a telítetlen nitrilek dinitrilekké történő ciánhidrogénezési lépését a találmányunk szerinti katalizátorrendszerrel végezzük.

Találmányunkat az alábbi példákkal kívánjuk szemléltetni.

Ezekben a példákban a rövidítések jelentése az alábbi:

- 25 PNP: (II) képletű vegyület  
PNA: (III) képletű vegyület  
cod: 1,5-ciklooktadién  
3M3BN: 2-metil-3-butén-nitril  
2M2BN: 2-metil-2-butén-nitril  
30 3PN: 3-pentén-nitril  
4PN: 4-pentén-nitril

ADN: adiponitril

MGN: metilén-glutárnitril

ESN: etil-szukcinonitril

DN: dinitrilek = ADN + MGN + ESN

5 AC: aceton-cianohidrin

EtPh: etilbenzol

EG: etilén-glikol

DC (V): a ciánhidrogénezendő vagy izomerizálendő (V) képletű  
vegyület átalakulási foka, amely a bemért (V) képletű vegyület  
10 mólszáma és a reakció végén jelenlévő mólszáma közötti különbség és a bemért mólok számának az aránya

TY (U): a képződött vegyület valódi kitermelése, ahol U = a képződött U mólszáma/az U legnagyobb mólszáma, amelyet a bemért (V) vegyület mólszámára vonatkoztatva számítunk ki

15 YD (U): az U vegyület szelektivitása = TY (U)/DC (V)

L: linearitás =  $YD(ADN) / [YD(ADN) + YD(MGN) + YD(ESN)]$

GC: gázkromatográfia

mol: mól

20 mmol: mmól

**1. és 2. példa: 2M3BN izomerizációja 3PN-né (1. reakcióvázlat)**

Eljárás:

20 mg (0,073 mmól, M = 275 g/mól, 1,0 ekv.) Ni(cod)<sub>2</sub> és  
25 5,0 ekv. PNP vagy PNA ligandumot mérünk be egy keverővel ellátott reaktorba, és a légtért argonra cseréljük. Körülbelül 1 ml (810 mg, d = 0,81, M = 81,12 g/mól) degazált 2M3BN-t adunk hozzá. A keveréket zárt rendszerben 100 °C hőmérsékleten tartjuk 1 órán át és keverjük. A reakcióközeget szobahő-  
30 mérsékletre (körülbelül 20 °C) hűtjük. A reakcióközeg különbö-

ző alkotórészeinek koncentrációit gázkromatográfiás analízissel határozzuk meg.

A kapott és a fenti analízisekből kiszámított eredményeket az alábbi I. táblázatban mutatjuk be:

5

I. táblázat

Példa	Ligandum	Mól-egyensúly	DC (2M3BN)	YD (3+4PN)	YD (2M2BN)
1	PNP	97 %	87 %	89 %	6 %
2	PNA	97 %	48 %	84 %	8 %

### 3-5. példa: 3PN ciánhidrogénezése ADN-né (2. reakcióvázlat)

#### Eljárás:

5 ekv. L ligandumot, 30 ekv. 3PN-t, 1 ekv. Ni(cod)<sub>2</sub>-t, 1 ekv. cink-kloridot, degazált társoldószert vagy társoldószereket és  
 10 30 ekv. aceton-ciánhidrint mérünk be szobahőmérsékleten egymás után egy Schlenk csőbe és argon légtérben tartjuk. A keveréket 600 fordulat/perc értéken keverjük 65 °C-on 2 órán át, majd szobahőmérsékletre hűtjük vissza. 3 ml acetont adunk  
 15 hozzá a visszamaradó hidrogén-cianid semlegesítésére. A különböző komponensek koncentrációját gázkromatográfiás analízissel határozzuk meg a konverzió és a szelektivitás fokának kiszámítása céljából.

A kapott és az analízisekből kiszámított eredményeket az  
 20 alábbi II. táblázatban mutatjuk be:

II. táblázat

Példa	Bemérés (mmól)						Eredmények		
	L ligandum	3PN	Ni-(cod) <sub>2</sub>	ZnCl <sub>2</sub>	AC	Oldószerek (térf%)	DC (3PN)	YD (DN)	L (ADN)
3	PNP (2,5)	15	0,44	0,5	15	EtPh (10)	13 %	53 %	75 %
4	PNA (2,5)	15,6	0,43	0,5	15,3	EG (26)	63 %	82 %	70 %
5	PNA (0,4)	2,1	0,08	0,08	2,4	EtPh (11)	73,2 %	65,4 %	74,4 %

### 6. példa: 3PN ciánhidrogénezése ADN-né

#### Eljárás:

- 5 Egy szeptummal ellátott 20 ml térfogatú Schott csőbe argon légtérben bemérünk 0,506 g (6,25 mmól,  $M = 81$  g/mól) 3PN-t, 340 mg (0,93 mmól)  $M = 366$  g/mól) PNP-t, 1,96 g degazált toluolt, 56,5 mg (0,21 mmól,  $M = 275$  g/mól) Ni(cod)<sub>2</sub>-t és 50,1 mg (0,21 mmól,  $M = 242$  g/mól) BPh<sub>3</sub>-at. A keveréket
- 10 65 °C-ra melegítjük keverés közben, és a szeptumon át 531 mg (6,24 mmól,  $M = 85$  g/mól) aceton-ciánhidrint injektálunk be egy fecskendő bevezető alkalmazásával 0,19 ml/óra áramlási sebességgel. 3 órán át reagáltatjuk, majd a keveréket szobahőmérsékletre visszahűtjük és a maradék hidrogén-cianid eltávolítása céljából semlegesítjük. A különböző komponensek koncentrációját gázkromatográfiás analízissel határozzuk meg a konverzió és a szelektivitás mértékének meghatározása céljából.

A kapott és az analízisből kiszámított eredményeket az alábbi

III. táblázatban mutatjuk be:

III. táblázat

Példa	DC (3PN)	YD (mononitrilek)	YD (dinitrilek)	Linearitás (ADN)
6	35 %	91,8 %	12,4 %	69 %

5

10



## Szabadalmi igénypontok

1. Eljárás legalább egy etilén típusú kötést tartalmazó szerves vegyületek hidrogén-cianiddal végzett ciánhidrogénezésére  
5 egy átmeneti fémet és egy szerves foszfor ligandumot tartalmazó katalizátor rendszer jelenlétében, **azzal jellemezve, hogy (I)** általános képletű foszfin-származék ligandumot használunk, amelynek képletében

E jelentése oxigén- vagy kénatom;

10 n jelentése 0 vagy 1;

R<sub>1</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub> és R<sub>6</sub> jelentése azonosan vagy különbözően hidrogénatom; 1-40 szénatomos adott esetben helyettesített, telített vagy telítetlen, alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncá adott esetben egy heteroatommal van  
15 megszakítva; adott esetben helyettesített monociklusos vagy policiklusos, telített, telítetlen vagy aromás, karbociklusos vagy heterociklusos csoport; vagy telített vagy telítetlen, alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncá adott esetben egy heteroatommal van megszakítva és egy fent meg-  
20 határozott karbociklusos vagy heterociklusos csoportot hordoz, amely csoport adott esetben helyettesített;

vagy R<sub>4</sub> és R<sub>5</sub> a hozzájuk kapcsolódó szénatommal együtt 5-7 szénatomos, adott esetben helyettesített, telített vagy telítetlen karbociklusos monociklust képez;

25 R<sub>2</sub> jelentése hidrogénatom vagy X csoport;

R<sub>3</sub> jelentése X csoport vagy Y csoport;

ahol az R<sub>2</sub> és R<sub>3</sub> helyettesítők közül az egyik és csak az egyik jelentése X csoport;

X jelentése 2-20 szénatomos monociklusos vagy biciklu-

sos, aromás, karbociklusos vagy heterociklusos csoport; 1-  
 -alkenil-csoport, amely 2-12 szénatomos szénhidrogén láncá-  
 ban adott esetben egy vagy több további telítetlen kötést tar-  
 tartalmaz; 1-alkinil-csoport, amely 2-12 szénatomos szénhidrogén  
 5 láncában adott esetben egy vagy több további telítetlen kötést  
 tartalmaz; vagy ciano-, (1-12 szénatomos alkil)karbonil-, (3-18  
 szénatomos aril)karbonil-, (1-12 szénatomos alkoxi)karbonil-,  
 (6-18 szénatomos ariloxi)karbonil-, karbamoil-, (1-12 szénato-  
 mos alkil)karbamoil- vagy di(1-12 szénatomos alkil)karbamoil-  
 10 csoport; és

Y jelentése az  $R_1$  helyettesítő jelentésében meghatáro-  
 zott csoportok a hidrogénatom kivételével;

$R_7$  jelentése az  $R_1$ ,  $R_4$ ,  $R_5$  és  $R_6$  helyettesítők jelentésé-  
 ben megadott csoportok vagy szénhidrogén-csoport, amely egy  
 15 karbonil-funkcióscsoportot vagy egy (a) vagy (b) általános  
 képletű csoportot tartalmaz, ahol

A jelentése hidrogénatom; 1-10 szénatomos alkil-;  
 vagy 6-10 szénatomos aril- vagy (6-10 szénatomos  
 aril)(1-10 szénatomos alkil)-csoport, amelynek aril része  
 20 adott esetben egy vagy több csoporttal, mégpedig 1-6  
 szénatomos alkil-, 1-6 szénatomos alkoxi- vagy trifluor-  
 metilcsoporttal, halogénatommal, di(1-6 szénatomos al-  
 kil)-amino-, (1-6 szénatomos alkoxi)karbonil-, karbamoil-,  
 (1-6 szénatomos alkil)-aminokarbonil- vagy di(1-6 szén-  
 25 atomos alkil)-aminokarbonil-csoporttal helyettesített;

- $Ar_1$ - $Ar_2$ - képletű csoport jelentése

- (c) képletű kétértékű csoport, amelyben az egyes  
 fenilcsoportok adott esetben egy vagy több alábbiakban  
 meghatározott Z csoporttal helyettesítettek; vagy

- (d) képletű kétértékű csoport, amelyben az egyes

30

fenilcsoportok adott esetben egy vagy több alábbiakban meghatározott Z csoporttal helyettesítettek;

Z jelentése 1-6 szénatomos alkil-, 1-6 szénatomos alkoxi- vagy triflurmetil-csoport, halogénatom, (1-6 szénatomos 5 alkoxi)-karbonil-, di(1-6 szénatomos alkil)amino-, (1-6 szénatomos alkil)aminokarbonil- vagy di(1-6 szénatomos alkil)-aminokarbonil-csoport;

R<sub>8</sub> és R<sub>9</sub> jelentése azonosan vagy különbözően helyettesített vagy helyettesítetlen arilcsoport.

10 2. Az 1. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** olyan (I) általános képletű foszfin-származékot használunk, amelynek képletében

R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub> és R<sub>6</sub> jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom vagy T csoport, utóbbi jelentése:

- 15 - 1-12 szénatomos, telített vagy telítetlen alifás szénhidrogén-csoport, amelynek szénhidrogén láncza adott esetben egy heteroatommal, mégpedig oxigén-, nitrogén- vagy kénatommal van megszakítva;
- 20 - 3-8 szénatomos, monociklusos karbociklusos csoport, amely telített vagy gyűrűjében 1 vagy 2 telítetlen kötést tartalmaz;
- 25 - telített vagy telítetlen biciklusos karbociklusos csoport, amely 2 egymáshoz kapcsolódó egyszerű gyűrűt tartalmaz, ahol mindegyik egyszerű gyűrű adott esetben egy vagy két telítetlen kötést és 3-8 szénatomot tartalmaz;
- mono- vagy biciklusos 6-10 szénatomos aromás karbociklusos csoport;
- telített, telítetlen vagy aromás 5- vagy 6-tagú mono-

ciklusos heterociklusos csoport, amely 1-3 heteroatomot, mégpedig nitrogén-, oxigén- és/vagy kénatomot tartalmaz;

- 5 - telített, telítetlen vagy aromás biciklusos heterociklusos csoport, amely két egymással kondenzált 5- vagy 6-tagú egyszerű gyűrűt tartalmaz, ahol mindegyik egyszerű gyűrű 1-3 heteroatomot, mégpedig egymástól függetlenül oxigén-, nitrogén- és/vagy kénatomot tartalmaz; vagy
- 10 - 1-12 szénatomos, telített, telítetlen alifás szénhidrogéncsoport, amelynek szénhidrogén láncá egy fent meghatározott karbociklusos vagy heterociklusos monociklusos csoportot hordoz,

ahol a T helyettesítő adott esetben helyettesített.

15 3. Az 1. vagy 2. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** olyan (I) általános képletű foszfinszármazékot használunk, amelynek képletében az  $R_1$  helyettesítő jelentésében szereplő X csoport 2-6 szénatomos alkenil-, 2-6 szénatomos alkinil-, fenil-, naftil-, tienil-, furil-, pirrolil-, imidazolil-, pi-  
20 razolil-, tiazolil-, oxazolil-, piridil-, pirazinil-, piridazinil-, izotiazolil-, izoxazolil-, benzofuril-, benzotienil-, indolil-, izoindolil-, indolizinil-, indazolil-, purinil-, kinolil-, izokinolil-, benzoxazolil-, benzotiazolil- vagy pteridinil-csoport.

4. Az 1-3. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** olyan (I) általános képletű foszfinszármazékot  
25 használunk, amelynek képletében az  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_4$ ,  $R_5$  és  $R_6$  helyettesítő jelentésében szereplő T helyettesítő a következő csoportok egyikével helyettesített:

1-6 szénatomos alkil-, 2-6 szénatomos alkenil-, 1-6 szénatomos  
30 alkoxi- vagy 2-6 szénatomos acilcsoport;  $-R_a-COOR_b$ ,

-R<sub>a</sub>-NO<sub>2</sub>, -R<sub>a</sub>-CN általános képletű csoport, di(1-6 szénatomos alkil)-amino-, di(1-6 szénatomos alkil)-amino(1-6 szénatomos alkil)-csoport, -O-CF<sub>3</sub> képletű csoport, -R<sub>a</sub>-CO-N(R<sub>b</sub>)<sub>2</sub>, -R<sub>a</sub>-hal vagy, -R<sub>a</sub>CF<sub>3</sub> általános képletű csoport, ahol R<sub>a</sub> jelentése kötés  
5 vagy 1-6 szénatomos alkiléncsoport, R<sub>b</sub> jelentése azonosan vagy különbözően hidrogénatom vagy 1-6 szénatomos alkilcsoport és hal jelentése halogénatom; vagy  
(e) általános képletű csoport, amelynek képletében R<sub>d</sub> jelentése 1-6 szénatomos alkil-, 2-6 szénatomos alkenil-, 1-6 szénatomos alkoxi-, 2-6 szénatomos acil-, di(1-6 szénatomos alkil)-  
10 amino-, di(1-6 szénatomos alkil)-amino(1-6 szénatomos alkil)-csoport vagy -O-CF<sub>3</sub>- képletű csoport vagy -R<sub>a</sub>-COOR<sub>b</sub>, -R<sub>a</sub>-NO<sub>2</sub>, -R<sub>a</sub>-CN, -R<sub>a</sub>-CO-N(R<sub>b</sub>)<sub>2</sub>, -R<sub>a</sub>-hal vagy -R<sub>a</sub>-CF<sub>3</sub> általános képletű csoport, ahol R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub> és hal jelentése a fent meghatározott;  
15 zott;

m értéke 0 és 5 közötti egész szám;

R<sub>c</sub> jelentése kötés, 1-6 szénatomos alkiléncsoport, oxigénatom, kénatom, -CO-, -COO- vagy -SO<sub>2</sub>- képletű vagy -NR<sub>b</sub>-,  
-CO-NR<sub>b</sub>-, -NR<sub>b</sub>-CO- általános képletű csoport, ahol R<sub>b</sub> jelentése a fent meghatározott.  
20

5. Az 1-4. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** (II) vagy (III) képletű foszfinszármazékot használunk.

6. Az 1-5. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** átmenetifém-vegyületként nikkel-, palládium-  
25 vagy vasvegyületet használunk.

7. Az 1-6. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** átmenetifém-vegyületként az alábbi nikkelvegyületeket használjuk:

30 nulla oxidációs állapotú nikkelt tartalmazó vegyületek, mint a kálium-tetracianonikkelát (K<sub>4</sub>[Ni(CN)<sub>3</sub>]), a bisz(akrilonitril)-nik-

kel(0), a bisz(1,5-ciklooktadién)-nikkel vagy az Va csoportból származó ligandumokat tartalmazó származékok, mint a tetrakisz(trifenilfoszfin)-nikkel(0);

5 nikkelt-vegyületek, például karboxilátok, karbonát, bikarbonát, borát, bromid, klorid, citrát, tiocianát, cianid, formiát, hidroxid, hidrofoszfít, foszfít, foszfát és ezek származékai, jodid, nitrát, szulfát, szulfit, arilszulfonátok vagy alkilszulfonátok.

8. Az 1-7. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** olyan szerves vegyületet használunk, amely legalább egy etilén típusú kettőskötést tartalmaz, mégpedig diolefineket, mint a butadién, az izoprén, az 1,5-hexadién vagy az 1,5-ciklooktadién, az etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó alifás nitril-származékokat, előnyösen lineáris penténitril-származékokat, mint a 3-penténitril vagy a 4-penténitril, monoolefineket, mint a sztírol, a metilsztírol, a vinilnaftalin, a ciklohexén vagy a metilciklohexén, továbbá néhány ilyen vegyület keverékét.

9. Az 1-8. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** olyan mennyiségű nikkeltvegyületet vagy más átmenetifém-vegyületet használunk, ami 1 mól cinhidrogénezen-dő vagy izomerizálendő szerves vegyületre számítva  $10^{-4}$  mól és 1 mól közötti mennyiségű nikkelt vagy más alkalmazott átmenetifémnek felel meg, továbbá az alkalmazott (I) általános képletű foszfinszármazék mennyiségét úgy választjuk meg, hogy ezen vegyület móljainak száma 1 mól átmeneti fémmre vonatkoztatva 0,5 és 500 közötti legyen.

10. Az 1-9. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a ciánhidrogénezési reakciót  $10\text{ C}^\circ$  és  $200\text{ C}^\circ$  közötti hőmérsékleten végezzük.

30 11. Az 1-10. igénypontok bármelyike szerinti eljárás etilén tí-

pusú telítetlen kötést tartalmazó nitrilvegyületek dinitril-származékainak hidrogén-cianiddal végzett ciánhidrogénezésére, **azzal jellemezve, hogy** a reakciót legalább egy átmenetifémvegyületet, legalább egy (I) általános képletű foszfonszármazékot és legalább egy Lewis-savat tartalmazó kokatalizátort tartalmazó katalizátorrendszer jelenlétében végezzük.

12. A 11. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó nitrilvegyületként etilén típusú telítetlen kötést tartalmazó alifás nitrileket, például lineáris pentén-nitrileket használunk, mint a 3-pentén-nitril, a 4-pentén-nitril vagy ezek keveréke.

13. A 12. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** olyan lineáris pentén-nitrileket használunk, amelyek bizonyos mennyiségben, általában kis mennyiségben egyéb vegyületet, például 2-metil-3-butén-nitrilt, 2-metil-2-butén-nitrilt, 2-pentén-nitrilt, valeronitrilt, adiponitrilt, 2-metil-glutaronitrilt, 2-etil-szukcinonitrilt vagy butadiént tartalmaznak.

14. A 11-13. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** a kokatalizátorként alkalmazott Lewis-savként a Periódusos Rendszer Ib, IIb, IIIa, IIIb, IVa, IVb, Va, Vb, VIb, VIIb vagy VIII csoportjából származó elemek vegyületeit használjuk.

15. A 11-14. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** Lewis-savként halogenid-, szulfát-, szulfonát-, halogénalkilszulfonát-, perhalogénalkilszulfonát-, karboxilát- vagy foszfátsókat használunk.

16. A 11-15. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy** Lewis-savként cink-kloridot, cink-bromidot, cink-jodidot, mangán-kloridot, mangán-bromidot, kadmium-

kloridot, kadmium-bromidot, ón-kloridot, ón-bromidot, ón-szulfátot, ón-tartarátot, indium-trifluormetilszulfonátot, ritka-földfémek, például lantán, cérium, prazeodímium, neodímium, samárium, európium, gadolinium, terbium, diszprozium, holmium, erbium, túlium, itterbium vagy lutécium kloridjait vagy bromidjait, vagy kobalt-kloridot, vas(II)-kloridot, ittrium-kloridot vagy ezek keverékét használjuk.

17. A 11-16. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy a Lewis-savat az átmenetifém-vegyület móljára vonatkoztatva 0,01 mól és 50 mól közötti mennyiségben használjuk.**

#### **mol mól**

18. Az 1-17. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy a butadién ciánhidrogénezéséből származó reakciókeverékben jelenlévő 2-metil-3-butén-nitril pentén-nitril-ekké történő izomerizációját hidrogén-cianid távollétében végezzük, amely izomerizációt legalább egy (I) általános képletű foszfinszármazékot és legalább egy átmenetifém-vegyületet tartalmazó katalizátor jelenlétében végezzük.**

19. A 18. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy a 2-metil-3-buténitrilt önmagában vagy 2-metil-2-butén-nitrillel, 4-pentén-nitrillel, 3-pentén-nitrillel, 2-pentén-nitrillel, butadiénnel, adiponitrillel, 2-metil-glutaronitrillel, 2-etil-szukcinnitrillel vagy valeronitrillel alkotott keverék formájában izomerizáljuk.**

20. A 18. vagy 19. igénypont szerinti eljárás, **azzal jellemezve, hogy az izomerizációs reakciót 10 C° és 200 C° közötti hőmérsékleten végezzük.**

21. A 18-20. igénypontok bármelyike szerinti eljárás, **azzal**

jellemezve, hogy a 2-metil-3-butén-nitril pentén-nitrillé történő izomerizálását legalább egy átmenetifém-vegyület, legalább egy (I) általános képletű foszfinszármazék és legalább egy Lewis-savat tartalmazó kokatalizátor jelenlétében végezzük.

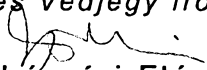
5

Tisztelettel:  
a meghatalmazott:

**DANUBIA**

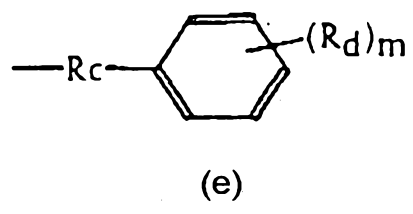
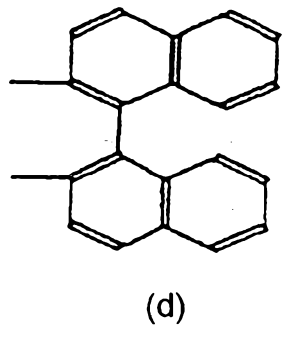
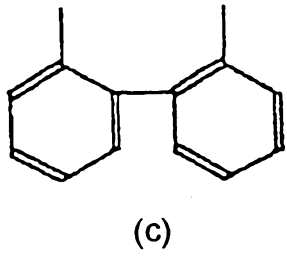
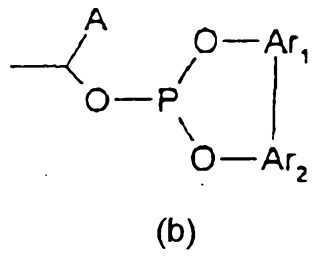
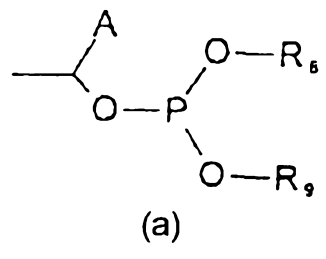
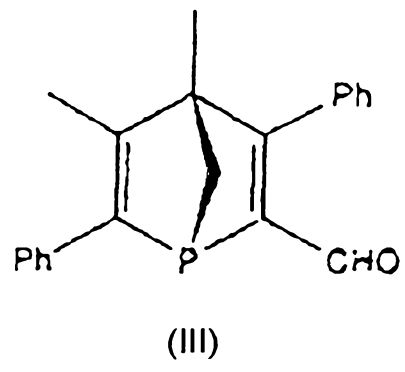
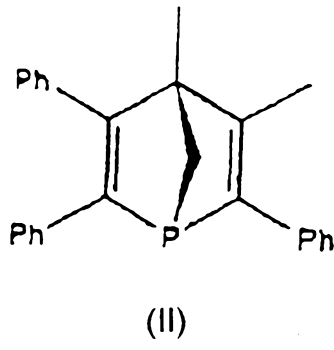
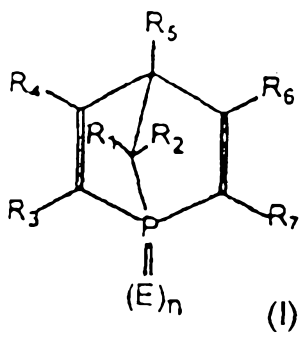
Szabadalmi és Védjegy Iroda Kft.

10

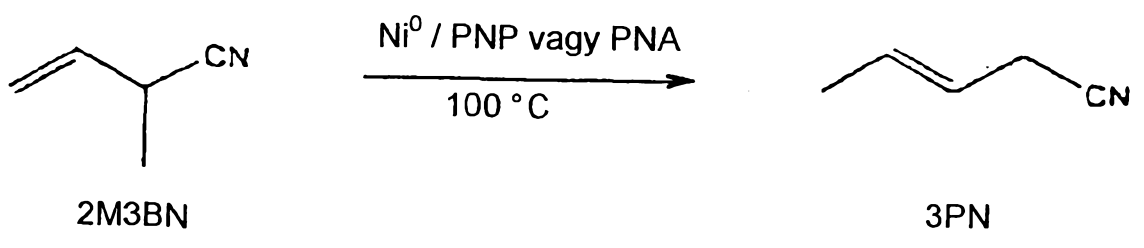
  
Dr. Fehérvári Flóra  
szabadalmi ügyvivő

270 + 1.

**KÖZZÉTÉTELI  
 PELDÁNY**



**1. reakcióvázlat**



2. reakcióvázlat

