

(19)



SUOMI - FINLAND

(FI)

PATENTTI- JA REKISTERIHALLITUS

PATENT- OCH REGISTERSTYRELSEN

FINNISH PATENT AND REGISTRATION OFFICE

(10) **FI 760602 A7**

(12) **JULKISEKSI TULLUT PATENTTIHAKEMUS
PATENTANSÖKAN SOM BLIVIT OFFENTLIG
PATENT APPLICATION MADE AVAILABLE TO THE
PUBLIC**

(21) Patentihakemus - Patentansökan - Patent application 760602

(51) Kansainvälinen patenttiluokitus - Internationell patentklassifikation -
International patent classification
C08G

(22) Tekemispäivä - Ingivningsdag - Filing date **09.03.1976**

(23) Saapumispäivä - Ankomstdag - Reception date **09.03.1976**

(41) Tullut julkiseksi - Blivit offentlig - Available to the public **12.09.1976**

(43) Julkaisupäivä - Publiceringsdag - Publication date **12.06.2019**

(32) (33) (31) Etu oikeus - Prioritet - Priority

11.03.1975 FR 7507480

(71) Hakija - Sökande - Applicant

1 • Les Derives Resiniques et Terpeniques, 30. rue Gambetta Dax, France, RANSKA, (FR)

(72) Keksijä - Uppfinnare - Inventor

1 • Lahourcade, Bernard, France, RANSKA, (FR)

2 • les Fargeres, Bonneau Gustave, France, RANSKA, (FR)

(74) Asiamies - Ombud - Agent

Kolster Oy Ab, Salmisaarenaukio 1, 00180 Helsinki

(54) Keksinnön nimitys - Uppfinningens benämning - Title of the invention

Menetelmä terpeeni-fenolihartsien valmistamiseksi

Förfarande för framställning av terpenfenolhartser

Les Derives Resiniques et Terpeniques 30, rue Gambetta, 40102 Dax, Ranska

Menetelmä terpeeni-fenolihartsien valmistamiseksi - Förfarande för framställning av terpenfenolhartser

Tämä keksintö koskee menetelmää parannettujen terpeeni-fenolihartsien valmistamiseksi, jotka erityisesti ovat käyttökelpoiset liima-aineina.

Useita valmistusmenetelmiä terpeeni-fenolihartsien valmistamiseksi on aikaisemmin esitetty ja, erityisesti, intialainen patentti no: 126 350 kuvailee valmistusmenetelmää terpeeni-fenolihartsin valmistamiseksi, jossa Δ^3 -kareeni saatetaan reagoimaan fenolin kanssa Friedel-Crafts-tyyppisen katalysaattorin läsnäollessa. Kuitenkin, aiemmat menetelmät ja erityisesti yllä mainitussa intialaisessa patentissa esitetty menetelmä, ei anna mahdollisuutta tuottaa hartseja riittäväällä saannolla, kun tavoitteessa on lopputuote, jolla on erinomaiset väri- ja pehmenemispisteominaisuudet, johtuen erikoisesti kareenien huonosta reaktiokyvystä.

Nyt on havaittu, että kun reaktio fenolin ja kareenin välillä suoritetaan määrättyissä olosuhteissa, on mahdollista tuottaa kirkas hartsi, joka erittäin hyvin liukenee useimpiin orgaanisiin liuottimiin ja joka sopii

hyvin yhteen useisiin elastomeereihin ja synteettisiin hartseihin ja joka, huomioiden sen terminen pysyvyys ja hapetus kestävyys on erityisen sopiva käyttöön liima-aineisiin.

Keksinnön kohteena on terpeenifenolihartsin valmistusmenetelmä, jossa fenoli saatetaan reagoimaan kareenin kanssa happamen kondensaatiokatalysaattorin läsnäollessa, nimittäin:

a) saatamalla 1 mooliosa fenolia, jossa on vähintään 2 reaktiivista ryhmää, reagoimaan 0,4 - 0,6 mooliosan kanssa kareenia, happamen kondensaatiokatalysaattorin läsnäollessa;

b) Antamalla reaktiotuotteen, joka saatiin vaiheessa a), reagoida 0,4 - 0,6 mooliosan kanssa edellä mainittua kareenia, edellä mainitun katalysaattorin läsnäollessa, ja

c) antamalla tuotteen, joka saatiin vaiheessa b), reagoida reaktiokykyisen terpeenin kanssa, mainitun reaktiokykyisen terpeenin ja vaiheessa b) lisätyn kareenin välisen moolisuhteen ollessa 0,5 - 5.

Keksinnön erään kohdan mukaan, mahdollinen katalysaattorijäännös poistetaan kohdassa c) saadusta tuotteesta.

Muut piirteet ja edut tässä keksinnössä tulevat ilmi seuraavasta yksityiskohtaisesta kuvauksesta.

Keksinnön mukaisen terpeenifenolihartsin valmistusmenetelmän mukaan ensin saatetaan fenoli reagoimaan kareenin kanssa kahdessa vaiheessa, jolloin ensimmäisessä vaiheessa koko fenolimäärä saatetaan reagoimaan suunnitteen kareenin puolen määrän kanssa katalysaattorin läsnäollessa, toisen puolen kareenista reagoidessa tämän jälkeen kondensaatiotuotteen kanssa, joka muodostui ensimmäisessä vaiheessa, yllä mainitun katalysaattorin läsnäollessa. Saatu fenoli-kareenihartsi saatetaan sitten reagoimaan reaktiokykyisen terpeenin kanssa, jolloin haluttu parannettu hartsi syntyy.

Keksinnön mukaisessa menetelmässä käytetyn fenolin pitää sisältää vähintään kaksi reaktiivista ryhmää, jotka voivat ottaa osaa kondensatioon, ts. kaksi vapaata fenoli -OH ryhmää. Käyttökelpoisiin fenoleihin kuuluvat tavallinen fenoli (hydroksibentseeni), kresolit, ksylenolit ja tynoli, useimmiten käytetyn ja halvimman fenolilähtöaineen ollessa tavallinen fenoli, joka sisältää kolme reaktiivista ryhmää.

Käyttökelpoisiin kareeneihin kuuluvat puhtaassa muodossa olevat Δ^3 -kareeni ja Δ^2 -kareeni, tai kareeni, joka on saatu männyn hartsiöljystä tai paperinvalmistustehtaiden öljyistä. Viimemainitussa tapauksessa todettiin, ettei ollut aivan välttämätöntä deodonisoida (höyryttää) öljy, koska sulfidijäännösten läsnäololla ei ole vaikutusta hartsien valmistusmenetelmään. On kuitenkin välttämätöntä käyttää stripattua ainetta, ts. ainetta josta kevyt pahanhajuinen merkaptaaniosuus, α -pineenijae ja raskas pohjajae on erotettu.

Puhtaalla Δ^3 -kareenilla tarkoitetaan tässä ainetta, jonka kromatografisesti määrätty pitoisuus on yli 95 %.

Keksinnön mukaisessa menetelmässä suositeltu käytettävä kareeni on Δ^3 -kareeni, puhtaassa muodossa, eli stripattuna kareenijakeena, jossa on 55 - 95 % kareenia.

Tällainen jae voi esimerkiksi sisältää:

α -pineeniä	0,3 %
β -pineeniä	3,4 %
Δ^3 -kareenia	76 %
dipenteeniä	11,7 %
muita monosyklisiä hiilivetyjä	6,5 %
parasymeeniä	2,1 %

Ensimmäisessä kondensaatiovaiheessa yksi mooliosa fenolia saatetaan reagoimaan 0,4 - 0,6 mooliosan kanssa kareenia, jolloin syntyy difenoliterpeeniä.

Tämä reaktio suoritetaan parhaiten lämpötilassa 90 - 110°C, Lewisin hapon taikka Friedel-Crafts-tyyppisen katalysaattorin läsnäollessa. Suositeltava katalysaattori on booritrifluoridi käytettynä sellaisenaan taikka jonakin sen tavallisena (so. etikkahappo-, eetteri- tai fenoli-kompleksina).

Kareenin lisäys voi tapahtua missä tahansa lämpötilassa välillä 20 ja 100°C, mieluiten 60 - 70°C:ssa. Itse reaktio läpiviedään 80 - 120°C:ssa, mieluiten 90 - 110°C:ssa ja pidetään tässä riittävän ajan (yleensä noin 2 tuntia) jotta haluttu difenoli-kareeni syntyy.

Fenolin ja kareenin välinen reaktio suoritetaan yleensä sopivan liuottimen läsnäollessa, kuten aromaattisen hiilivedyn, esimerkiksi tolueenin tai ksyleenin läsnäollessa.

Reaktio pitää suorittaa kuivilla reagensseilla, joissa ei ole läsnä hydroperoksidia, metallisuoloja tai oksideja, kuten rautaoksidia.

Jotta veden pääsy reaktioseokseen estyisi, menetelmän eri reaktiovaiheet suoritetaan suojakaasun, kuten esim. typen, hiilidioksidin tai argonin läsnäollessa.

Ensimmäisen reaktiovaiheen päätyttyä, 0,4 - 0,6 mooliosuutta kareenia lisätään reaktioseokseen, mieluiten aromaattisen hiilivedyn liuoksena, myöskin lisätään katalysaattoria, ja kondensaatio saa jatkua, lämpötilassa 80 - 120°C, mieluiten 90 - 110°C:ssa.

Kondensaation päätyttyä saatu kondensaatiotuote saa reagoida bisyklisen tai monosyklisen reaktiokykyisen terpeenin kanssa, joka voi olla esimerkiksi α - tai β -pineeni, limoneeni, dipenteeni, isolimoneeni tai kamfeeni.

Tässä vaiheessa c) lisätyn reaktiivisen terpeenin ja edellisessä, toisessa kondensaatiovaiheessa (vaihe b), lisätyn kareenin välistä mooli-suhdetta pidetään välillä 0,5 ja 5, mieluiten välillä 2 ja 4.

On huomioitava, että edellämainituissa reaktioissa, kareeni tulisi eroittaa reaktiokykyisestä terpeenistä; to., että kareenin ja fenolin välinen reaktio tulisi suorittaa pääosissa ilman että reaktiokykyinen terpeni on läsnä, joka siinä tapauksessa, että käytetty raaka-aine on saatu paperitehtaiden öljyistä, joka sisältää sekä kareenia että α -pineeniä, vaatii edeltävää jakeisiin erottamista, jotta mahdollisimman tehokas α -pineenin eroittaminen kareenista saataisiin aikaan. Kondensaatioreaktio reaktiokykyisen terpeenin kanssa suoritetaan mieluiten molempien alkuvaiheiden mukaisessa lämpötilassa, esimerkiksi välillä 80 ja 120°C.

Yllä mainittu menetelmä antaa, hyvin korkealla saannolla, terpeni-fenolihartsin, jolla on puhdas pysyvä väri ja tyydyttävä pehmenemispiste, suuruusluokkaa 95 - 97°C. Rengas-pallo-standardimenetelmän (NF.T 66008) mukaan. Mainitut hartsit, jotka liukenevat useimpiin ei-hydroksyyliisiin orgaanisiin liuottimiin, sopivat erinomaisesti yhteen useaan elastomeeriin ja tekohartsiin. Ne ovat termisesti pysyviä ja hapetusta vastustavia ja niille löytyy hyödyllistä käyttöä liima-alalla; ne ovat myöskin parempia kuin tavalliset hartsit, erityisesti polyterpeenihartseja paremmat. Saadut hartsit ovat hyvin vähän polaariset.

Jotta vältettäisiin sellaisia pulmia kuin valmiin tuotteen värjäytyminen, on suositeltava, että reaktion päätyttyä, erotetaan hapon katalysaattori joka saattaa olla läsnä hartsissa joka saatiin kolmannessa reaktiovaiheessa.

Mainittu erotus voi tapahtua millä tahansa sopivalla keinolla, tyyppisesti lisäämällä korotetussa lämpötilassa (noin 100°C) lipeää johon on lisätty piimaata, tämä johtaa sekä happamuuden poistoon että mahdollisesti hartsissa läsnäolevien värillisten aineiden poistoon.

Liuottimen poisto kolmannessa reaktiovaiheessa saadusta tuotteesta tapahtuu vakuumitisolaamalla taikka tisolaamalla normaalipaineessa. Mainittu tislauk mahdollistaa myöskin pienen yläjakeen poiston, jossa on sivutuotteita, kuten diterpeenejä ja muutamia pienen molekyylipainon omaavia terpeni-fenoleja.

Keksinnön mukainen menetelmä on erityisen arvokas, sentakia, että fenoli käytetään kokonaan, kuten kaikki muutkin reagenssit, ja liuotin otetaan talteen. Tämä antaa erittäin merkittävän taloudellisen edun, ja menetelmä on lisäksi turvallinen ja ympäristöystävällinen.

Seuraavat esimerkit jotka eivät rajoita sovellutuksia valaisevat keksinnön mukaista menetelmää.

Esimerkki 1

(a) Seuraavat lähtöaineet lisätään ruostumattomaan teräsreaktoriin:

Fenoli	12 kg
Tolueeni	10 kg
Booritrifluoridi (etikkakompleksina)	0,2 kg

jonka jälkeen lisätään hitaasti

Kareenia	8,400 kg
----------	----------

60°C:ssa, jolloin lämpötila pidetään 60°C:ssa, jäädyttään mikäli tarpeen.

Kun lisäys on tapahtunut, lämpötila nostetaan 100°C:een ja keitetään 2 tuntia mainitussa lämpötilassa

(b) Tämän jälkeen lisätään seuraavat aineet, 100°C:ssa:

Booritrifluoridi kompleksi	0,3 kg
Tolueeni	5 kg
Kareeni (useissa erissä)	8,4 kg

ja, koko kareenimäärän kondensoitua,

(c) α -pineeni 31,2 kg
lisätään ja seos keitetään 120°C:ssa 3 tuntia.

Saatu tuote laimennetaan 15 - 20 kg:lla tolueenia ja käsitellään sitten 100°C:ssa

lipeällä	0,5 kg
piimaalla	1,6 kg
suodatusapuaineella	0,1 kg

Suodatettu aine tislataan vakuumissa tai normaalipaineessa ja stri-pataan täten liuottimesta ja pienestä yläjakeesta jossa on diterpeenejä ja hyvin pienen molekyylipainon omaavia terpeeni-fenoleja.

Erittäin kirkas hartsi, jolla on puhdas pysyvä väri, erotetaan tislauslaitteesta. Saanto on 90 - 92 %, rengaspallo-arvo on 95° - 97°C.

Yllä mainitulla hartsiilla on seuraavat ominaisuudet:

Laatu	3A-kiteinen
Happamuus	nolla
Rengas-pallo-arvo	95 - 97°C
Hydroksyyli-luku	20 - 30
Keskimääräinen mole- kyyli-paino noin	600

Ilmoitettu laatu on Ranskalaisen väriasteikon mukaan luonnossa esiintyville rosiineille.

Mainittu hartsi on erittäin hyvin liukoinen useimpiin liuottimiin (alifaattisiin ja aromaattisiin hiilivetyihin, ketoneihin, estereihin, kloorattuihin liuottimiin, korkeampiin alkoholeihin ja vastaaviin) paitsi metanoliin ja etanoliin.

Hartsi sopii erittäin hyvin yhteen monien elastomeerien ja synteettisten hartsien kanssa kuten luonnonkumin, SBR kumi, neopreeni, polyisobutyleenien, etyyli/vinyyliaasetatti kopolymerien, joittenkin polyamidien, polyetyleenivahojen, tavallisten luonnossa esiintyvien hartsien, maaöljypohjaisten hartsien kuten isopreeni-pipenyleenikopolymerien, polyterpeenihartsien, esterikumiin ja erilaisten muunneltujen tai muuntamattomien rosiiniesterien ja vastaavien kanssa.

Huomioiden sen terminen kestävyys ja hapetuskestävyys paineessa, tämä hartsi soveltuu käyttöön erinomaisesti liima, "hot-melts", ja itsekiinnittyvien liimojen aloilla, näillä se on osoittautunut ylivoimaiseksi tavallisiin hartseihin verrattuna, erityisesti tavallisiin polyterpeenihartseihin verrattuna.

Esimerkki 2

Esimerkin 1 valmistusmenetelmää käytetään, paitsi että α -pineeni korvataan samalla määrällä 95 %:sti puhdasta β -pineeniä (kaupallista laatua). Saadaan hartsi, jolla on pääpiirteissään samat laatuominaisuudet kuin mitä saadaan esimerkissä 1 α -pineeniä käytettäessä; saanto 92 %.

Esimerkki 3

Esimerkin 1 valmistusmenetelmää noudatetaan, paitsi että α -pineeni korvataan tislauksijakeella jolla on seuraava kokoomus:

α -pineeni	22 - 23 %
Pyreneeni	40 - 43 %
Dipenteeni	25 - 26 %
Muuta	8 - 10 %

Hartsi, jonka rengas-pallo-arvo on 98°C, saadaan 92 % saannolla.

Esimerkki 4

Esimerkin 1 valmistusmenetelmää noudatetaan, paitsi että α -pineeni korvataan vastaavalla painomäärällä isolimoneenia tai 2,8-p.mentadieeniä, jolloin saadaan 82 % saannolla 2A-laatuista hartsia; rengas-pallo-arvo on 95°C.

Esimerkki 5

Esimerkin 1 valmistusmenetelmää noudatetaan, paitsi että α -pineeni korvataan vastaavalla painomäärällä limoneeniä, jolloin saadaan 83 - 85 % saannolla hartsi, jolla on sama rengas-pallo-arvo kuin esimerkin 1 hartsilla.

Esimerkki 6

Esimerkin 1 valmistusmenetelmää noudatetaan, paitsi että α -pineeni korvataan vastaavalla painonmäärällä kamfeeniä, jolloin saadaan 88 - 90 % saannolla hartsi, jolla on samaa suuruusluokkaa oleva rengas-pallo-arvo kuin esimerkin 1 hartsilla.

Esimerkki 7

Esimerkin 1 valmistusmenetelmää noudatetaan, paitsi että fenoli (12 kg) korvataan 13,6 kg:lla meta-kresolia, kaikkien muitten raaka-aineiden ja käsittelyolosuhteiden ollessa samat, jolloin saadaan pehmeä, erittäin kirkas hartsi jolla on erinomaiset tartuntaominaisuudet ja joka on erittäin pysyvä. Hartsin ominaisuudet ovat seuraavat

Saanto	84 %
Hydroksyylliluku	14
Happamuus	nolla
Keskimääräinen mole- kyyllipaino noin	500

Esimerkki 8

Jotta molaarinen suhde π yhtä kuin reaktiokykyinen terpeeni/kareeni ja sen vaikutus tulisi näkyviin, sarja kokeita suoritettiin tuotteella jota saatiin valmistusvaiheessa (a) esimerkissä 1, käyttäen eri α -pineeni/ Δ^3 -kareeni suhteellisia määriä.

Saadut tulokset on taulukoitu alla esitetyssä taulukossa.

Taulukko

Tuote	Määrä (kg)	π	Hartsi (saanto %)	Rengas-pallo- arvo ($^{\circ}\text{C}$)
(1) Δ^3 -kareeni α -pineeni	20 15	0.75	83.5	95 $^{\circ}$
(2) Δ^3 -kareeni α -pineeni	15 20	1.33	84.6	95 $^{\circ}$
(3) Δ^3 -kareeni α -pineeni	10 25	2.5	87.5	95 $^{\circ}$
(4) Δ^3 -kareeni (Ex.1) α -pineeni	8.4 31.2	3.7	>90	95 $^{\circ}$

Patenttivaatimukset:

1. Menetelmä terpeeni-fenolihartsin valmistamiseksi saattamalla kareeni reagoimaan fenolin kanssa happaman katalysaattorin läsnäollessa, t u n n e t t u siitä, että

(a) saatetaan 1 mooliosa fenolia, jossa on vähintään kaksi reaktiivista kohtaa, reagoimaan 0,4 - 0,6 mooliosan kanssa kareenia, happaman katalysaattorin läsnäollessa;

(b) saatu reaktiotuote saatetaan reagoimaan 0,4 - 0,6 mooliosan kanssa mainittua kareenia, mainitun katalysaattorin läsnäollessa; ja

(c) annetaan näin muodostuneen tuotteen reagoida reaktiokykyisen terpeenin kanssa reaktiokykyisen terpeenin/kareenin jota lisättiin vaiheessa (b) moolisuhteen ollessa alueella 0,5 - 5.

2. Patenttivaatimuksen 1 mukainen menetelmä, t u n n e t t u siitä, että mahdollinen jäännöskatalysaattori poistetaan valmistusvaiheessa (c) saadusta tuotteesta.

3. Patenttivaatimuksen 1 valmistusmenetelmä kuten patenttivaatimuksessa 1, t u n n e t t u siitä, että fenoli valitaan hydroksibentseenistä, kresoleista, ksyleneleista ja tymolista.

4. Patenttivaatimuksen 1 - 3 valmistusmenetelmä kuten missä tahansa edellä mainituista patenttivaatimuksista, t u n n e t t u siitä, että kareeni on Δ^3 -kareeni, Δ^2 -kareeni tai kareeni, jota on saatu mäntyhartsiöljystä tai paperinvalmistustehtaiden öljyistä, jossa on noin 55 - 95 % kareenia.

5. Patenttivaatimuksen 1 - 4 valmistusmenetelmä kuten missä tahansa edellä mainituista patenttivaatimuksista, t u n n e t t u siitä, että reaktiokykyinen terpeeni on α - tai β -pineeni, limoneeni, isolimoneeni, dipenteeni, kamfeeni tai seos tästä.

6. Patenttivaatimuksen 1 - 5 valmistusmenetelmä kuten missä tahansa edellä mainituista patenttivaatimuksista, t u n n e t t u siitä, että vaiheet (a) - (c) suoritetaan lämpötilassa 80 - 190°C.

7. Patenttivaatimuksen 1 - 6 valmistusmenetelmä kuten missä tahansa edellä mainituista patenttivaatimuksista, t u n n e t t u siitä, että vaiheet (a) - (c) suoritetaan liuottimen läsnäollessa.

8. Patenttivaatimuksen 7 valmistusmenetelmä, t u n n e t t u siitä, että liuotin on aromaattinen hiilivety.

9. Patenttivaatimuksen 8 valmistusmenetelmä, t u n n e t t u siitä, että aromaattinen hiilivety on tolueni.

10. Valmistusmenetelmä kuten missä tahansa edellä mainituista patent-

tivaatimuksista, t u n n e t t u siitä, että katalysaattori on booritri-fluoridi, sellaisenaan tai sen kompleksina.

11. Valmistusmenetelmä kuten missä tahansa edellä mainituista patent-tivaatimuksista, t u n n e t t u siitä, että osa katalysaattorista lisätään vaiheessa (a) ja loput vaiheessa (b).

Patentkrav:

1. Förfarande för framställning av terpen-fenolhartser genom reaktion av ett karen med en fenol i närvaro av en sur kondensationskatalysator, k ä n n e t e c k n a t därav, att det omfattar:

a) reagerande av en moldel fenol med åtminstone två reaktiva ställningar, med 0,4-0,6 moldelar karen, i närvaro av en sur kondensationskatalysator;

b) reagerande av reaktionsprodukten från steg (a) med 0,4-0,6 moldelar av nämnda karen, i närvaro av nämnda katalysator; och

c) därefter reagerande av produkten från steg (b) med ett reaktivt terpen, varvid molförhållandet reaktivt terpen till mängden karen tillsatt i steg (b) ligger i området från 0,5 till 5.

2. Förfarande enligt patentkravet 1, k ä n n e t e c k n a t därav, att återstoden av katalysatorn, ifall föreliggande, avlägsnas från produkten, som erhållits i steg (c).

3. Förfarande enligt patentkravet 1, k ä n n e t e c k n a t därav, att fenolen är vald bland hydroxibensen, kresolerna, xylenolerna och tymol.

4. Förfarande enligt något av föregående patentkrav, k ä n n e t e c k n a t därav, att karenet är Δ^3 -karen, Δ^2 -karen eller karen derivaterat från tallhartsoljor eller oljor från pappersbruk, vilka oljor innehåller från ca. 55 till ca. 96 % karen.

5. Förfarande enligt något av föregående patentkrav, k ä n n e t e c k n a t därav, att de reaktiva terpenerna är α - eller β -pinen, limonen, isolimonen, dipenten, kafen eller en blandning av dessa.

6. Förfarande enligt något av föregående patentkrav, k ä n n e t e c k n a t därav, att stegen (a)-(c) utföres vid en temperatur av 80-120°C.

7. Förfarande enligt något av föregående patentkrav, k ä n n e t e c k n a t därav, att stegen (a)-(c) utföres i närvaro av ett lösningsmedel.

8. Förfarande enligt patentkravet 7, k ä n n e t e c k n a t därav, att lösningsmedlet är ett aromatiskt kolväte.

9. Förfarande enligt patentkravet 8, k ä n n e t e c k n a t därav, att det aromatiska kolvätet är toluen.

10. Förfarande enligt något av föregående patentkrav, k ä n n e t e c k n a t därav, att katalysatorn är bortrifluorid som sådan eller som komplex.

11. Förfarande enligt något av föregående patentkrav, k ä n n e t e c k n a t därav, att en del av katalysatorn tillsätts i steg (a) och återstoden i steg (b).