

408313



P.- 52.027

Fc.1606

MEMORIA DESCRIPTIVA

Int. Cl.: CO7C//C09B

para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

A nombre de MONTECATINI EDISON S.p.A.

entidad italiana

establecida en Foro Buonaparte, 31, Milán, Italia

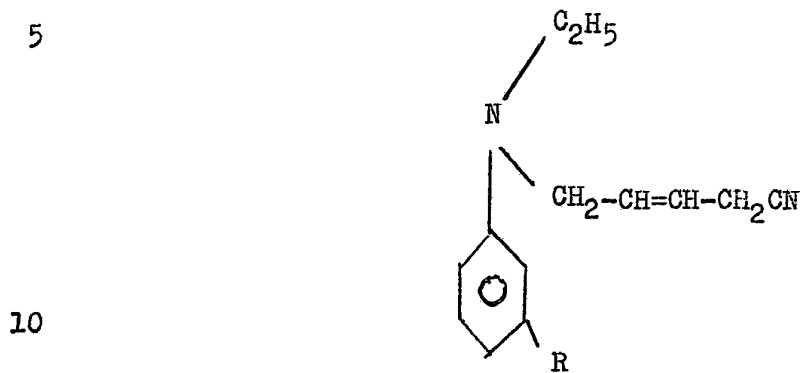
por: "UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE
N-ETIL-N-(2-BUTENO-4-CIANO)-AMINO-BENCENOS"

(Clase Internacional CO7c)

408313



Esta invención se refiere a un procedimiento para la preparación de compuestos orgánicos que tienen la fórmula general



15 en la cual R es un átomo de hidrógeno o el grupo metilo.

Más particularmente, la presente invención se refiere a la preparación de N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-anilina, y de N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina (compuestos a los que, de aquí en adelante, se hace referencia genéricamente como N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-amino-bencenos) por reacción de N-etil-anilina y, respectivamente, de N-etil-m-toluidina (compuestos a los que, de aquí en adelante, se hace referencia genéricamente como N-etilaminobencenos) con trans-1,4-dicloro-2-buteno, y por cianuración subsiguiente de la N-etil-N-(2-

20

25

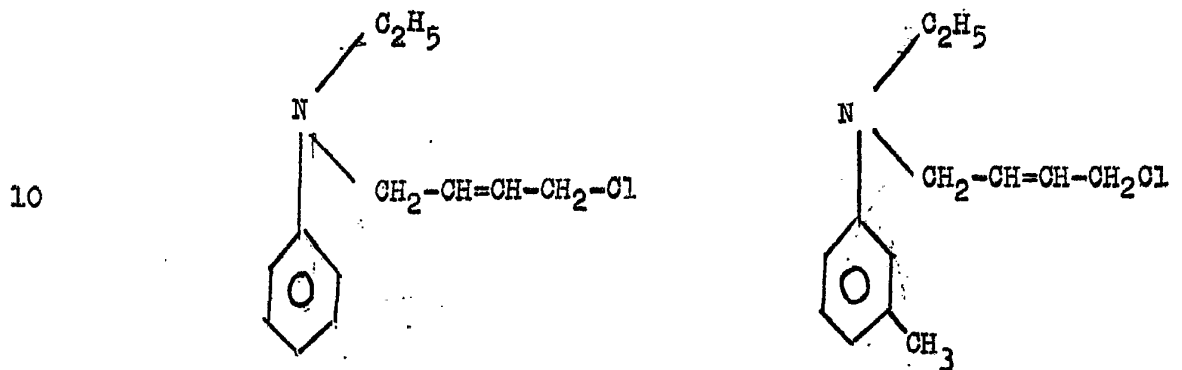
18.9.72

- 2 -

408313



-buteno-4-cloro)-anilina y de la N-etil-N-(2-buteno-
4-cloro)-m-toluidina (compuestos a los que se hace
referencia de aquí en adelante como N-etil-N-(2-bu-
teno-4-cloro)-amino-bencenos) así obtenidos, que
5 tienen las fórmulas



Los N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-amino-
bencenos obtenidos de acuerdo con esta invención
son compuestos intermedios útiles para la prepara-
ción de colorantes del tipo azoico dispersado para
fibras repelentes del agua, y del tipo catiónico
20 monoazoico solubles en agua.

Como es sabido, la reacción de sustitu-
ción con un compuesto que tiene dos funciones igua-
les una a otra conduce generalmente, incluso en pre-
sencia de un exceso de tal compuesto, a rendimien-
25 tos comparativamente bajos de producto monosusti-

25.10.72

408313

-7



tuido.

Es sabido, efectivamente, que se forman al mismo tiempo cantidades considerables de producto disustituido.

5 Por consiguiente, los expertos en la técnica no podrían prever que en una reacción en la que tuviese lugar una sustitución entre un N-etil-amino-benceno y el trans-1,4-dicloro-2-buteno, hubiera posibilidad de sustituir solamente uno de
10 los átomos de halógeno del trans-1,4-dicloro-2-buteno con obtención de altos rendimientos del producto de mono-sustitución, es decir, el N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-amino-benceno.

De hecho, como concierne a la reactividad del trans-1,4-dicloro-2-buteno, la bibliografía sugiere la formación de productos de di-sustitución y, con relación particular al isómero cis-, también de productos cíclicos, en consideración a la elevada reactividad de los dos átomos de cloro
15 contenidos en estos compuestos.
20

Cuando se aplica industrialmente el procedimiento de acuerdo con esta invención, se utiliza en general el 1,4-dicloro-2-buteno "técnico", constituido usualmente por 95 a 98% de isómero
25 trans- y por 2 a 5% de isómero cis- mezclados uno

18.9.72

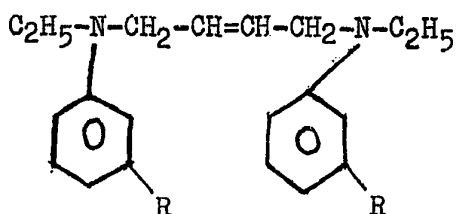
408313



con otro.

Por consiguiente, a partir de la reacción entre los N-etil-amino-bencenos y el 1,4-dicloro-2-buteno "técnico" que se produce durante la primera etapa del procedimiento de esta invención, se obtienen también, además del producto de mono-sustitución deseado, pequeñas cantidades del producto de di-sustitución, cuya fórmula es

10



15

en la cual R tiene el mismo significado indicado anteriormente en esta memoria, y de una impureza adicional de naturaleza cíclica, que se deriva del isómero cis- y que puede detectarse, por ejemplo, por análisis cromatográfico sobre una capa delgada de gel de sílice.

Además de ello, los expertos en la técnica no podrían prever la posibilidad de separar, de una manera sencilla y efectiva, el producto de mo-

18.9.72



no-sustitución deseado de los sub-productos de la reacción (productos de di-sustitución, e impurezas cíclicas) y de las sustancias reaccionantes no convertidas.

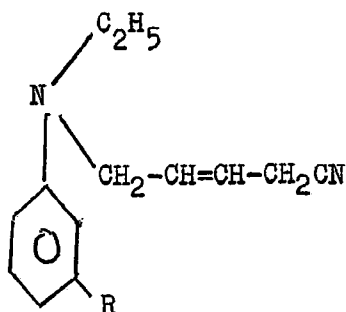
5 Un objeto de esta invención es el de proporcionar un procedimiento sencillo y ventajoso para la preparación de compuestos orgánicos útiles tales como N-etil-N-(2-buten-4-ciano)-anilina y N-etil-N-(2-buten-4-ciano)-m-toluidina.

10 Otro objeto consiste en proporcionar el método para la obtención de rendimientos elevados de N-etil-N-(2-buten-4-cloro)-anilina y de N-etil-N-(2-buten-4-cloro)-m-toluidina.

15 Otros objetos de esta invención se deducirán claramente por los expertos en la técnica a partir de la descripción que sigue.

La presente invención consiste en un procedimiento para la preparación de compuestos que tienen la fórmula

20



25

18.9.72

408313



en la cual R es un átomo de hidrógeno o el grupo metilo, caracterizado por el hecho de que un N-etil-amino-benceno seleccionado de entre N-etil-anilina y N-etil-m-toluidina se hace reaccionar con
5 trans-1,4-dicloro-2-buteno con arreglo a una proporción molar trans-1,4-dicloro-2-buteno/N-etil-amino-benceno igual a 5 como mínimo, a una temperatura comprendida entre 20°C y 120°C y a la presión atmosférica, en presencia de un agente neutralizan-
10 te, en una cantidad de al menos 1 equivalente por cada mol de N-etil-amino-benceno; por el hecho de que la masa de reacción así obtenida se somete a una primera extracción con HCl 0,5 normal, selectiva pa-
ra la extracción del N-etil-amino-benceno sin reac-
15 cionar y del producto de di-sustitución, y el resi-
duo se somete a una segunda extracción con HCl 2 normal, selectiva para el N-etil-N-(2-buteno-4-clo-
ro)-amino-benceno formado en la reacción; y por el hecho de que a partir de la solución en ácido clor-
20 hídrico 2 normal así obtenida, después de neutrali-
zación, se aíslan N-etil-N-(2-buteno-4-clo-
lina o, respectivamente, N-etil-N-(2-buteno-4-clo-
ro)-m-toluidina de acuerdo con la técnica, las cua-
les se transforman después por cianuración en N-etil-
25 N-(2-buteno-4-ciano)-anilina o, respectivamente, en

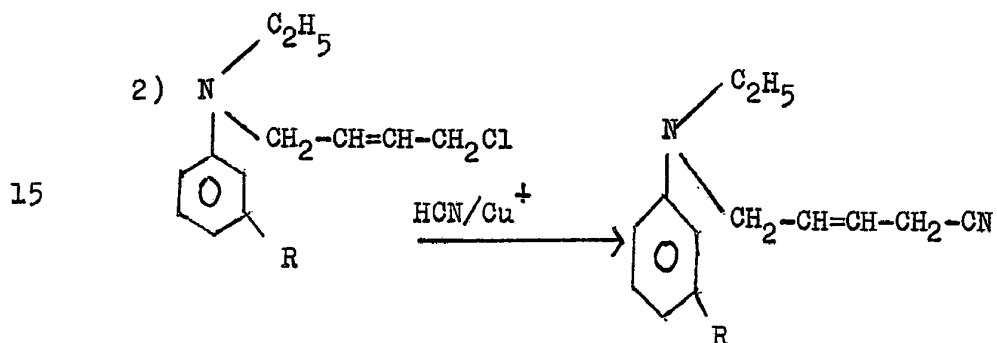
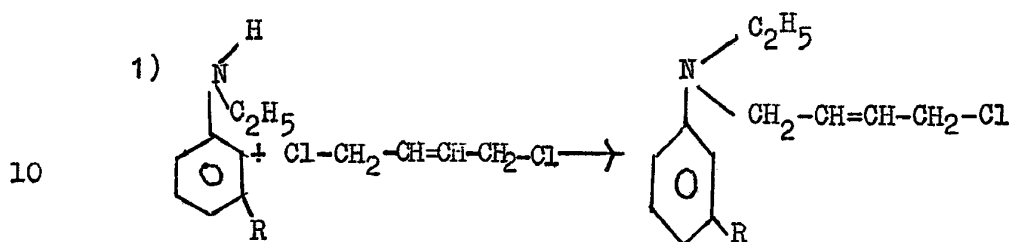
18.9.72



N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina.

El procedimiento se representa esquemáticamente por las ecuaciones siguientes:

5



20 en las cuales R tiene el significado indicado anteriormente en esta memoria.

Durante la reacción 1), la temperatura se mantiene entre aproximadamente 20°C y 120°C, preferiblemente a aproximadamente 80°C.

25 La reacción se lleva a cabo a la presión

408313-7



atmosférica. La proporción molar trans-1,4-dicloro-
2-buteno/N-etil-amino-benceno es al menos igual a
5; se obtienen resultados particularmente favora-
bles con una proporción molar de aproximadamente 10;
5 son posibles valores más altos, aunque menos inte-
resantes desde un punto de vista económico debido
a las grandes cantidades de sustancias reaccionan-
tes a tratar, a las mayores recirculaciones, etc.

La reacción 1) se lleva a cabo en presen-
10 cia de una acción de agente de neutralización debi-
do a la acidez clorhídrica desarrollada durante la
reacción. Agentes de neutralización adecuados son
carbonato de sodio anhidro, carbonato de potasio
anhidro, óxido de magnesio u óxido de calcio anhi-
15 dros, en cantidades de al menos 1 equivalente por
mol de N-etil-amino-benceno.

El N-etil-amino-benceno propiamente di-
cho, se puede emplear como agente de neutraliza-
ción en una cantidad molar al menos doble de la
20 cantidad estequiométrica de la reacción 1). El
agente de neutralización preferido es el carbona-
to de sodio anhidro.

No se considera el empleo de disolventes,
no obstante lo cual se puede llevar a cabo también
25 la reacción 1) en presencia de disolventes inertes

408313

-7



inmiscibles con el agua, tales como éter de petróleo, tolueno, xileno, clorobenceno, etc. Si se utiliza un disolvente, el preferido es éter de petróleo.

Al final de la reacción 1), la masa de
5 reacción, liberada de las sales que se han formado, se somete, de acuerdo con la presente invención, a una serie de extracciones sucesivas llevadas a cabo con HCl de concentraciones diferentes y selectivas para cada uno de los componentes individuales de la
10 solución. En particular, las extracciones se llevan a cabo como sigue:

- 15 a) se realiza una primera extracción con HCl 0,5 normal, selectiva para el N-etil-amino-benceno que no ha reaccionado y para los productos de di-sustitución;
- 20 b) sobre la solución residual se realiza una segunda extracción con HCl 2 normal, la cual es selectiva para el producto de mono-sustitución, es decir, el N-etil-N-(2-buten-4-cloro)-amino-benceno;
- c) sobre la solución residual se lleva a cabo una tercera extracción con HCl de concentración al menos 5 normal, que separa las impurezas de naturaleza cíclica.

25 Por consiguiente, el residuo de la extrac-

408313



ción final está constituido por la mezcla de 1,4-dicloro-2-butenos isómeros con el disolvente, en caso de emplearse éste, los cuales se pueden recuperar por separado.

5 La solución clorhídrica obtenida en la etapa b), que contiene el producto de mono-sustitución, diluida opcionalmente con agua, decolorada con carbón activado y filtrada después, se neutraliza y se recupera el N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-
10 amino-benceno de acuerdo con técnicas bien conocidas, tales como decantación, centrifugación, extracción con un disolvente, etc.

 El método de separación, de acuerdo con esta invención, de los productos que constituyen la
15 mezcla obtenida de la reacción 1), se revela como fácil y rápido. Para comprobar este hecho basta con considerar que, si se adopta un método alternativo con el fin de separar los componentes de la
mezcla de reacción, tal como, por ejemplo, una sola
20 extracción con HCl, por ejemplo con HCl 2 normal, y la solución clorhídrica obtenida se trata como se ha descrito anteriormente en esta memoria, se obtiene una mezcla constituida por los productos
de mono-sustitución y de di-sustitución y por el
25 N-etil-amino-benceno sin reaccionar, componentes

408313



972

que son difíciles de separar.

En cuanto a la reacción de cianuración 2), se puede llevar a cabo de acuerdo con cualquiera de las técnicas conocidas: por ejemplo, por medio
5 de ácido cianhídrico líquido o de cianuros alcalinos y ácidos, en presencia de cantidades catalíticas de sales cuprosas (CuCl, CuCN, etc.).

La cianuración se puede llevar a cabo, por ejemplo, haciendo que una solución acuosa de
10 HCN reaccione, en presencia de una cantidad catalítica de CuCl, con el producto de mono-sustitución a una temperatura comprendida entre 40°C y 77°C. Después de enfriar, el complejo, que podría haberse formado a partir de la reacción entre la sal cuprosa y el producto de mono-sustitución, se filtra
15 y puede reciclarse como tal en sustitución de la sal cuprosa.

Por neutralización y extracción con un disolvente, se recupera de la solución residual el
20 N-etil-N-(2-buten-4-ciano)-amino-benceno deseado.

La reacción de cianuración se puede llevar a cabo también empleando NaCN y HCl.

Los ejemplos que siguen se dan para ilustrar mejor la presente invención, sin constituir,
25 no obstante, una limitación de la misma.

18.9.72

408313



N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-anilina, N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-m-toluidina, N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-anilina, y N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina son productos nuevos per se; el
5 alcance de protección de esta solicitud de patente debe considerarse extendido también a dichos compuestos.

EJEMPLO 1

10 Se introducen 700 g (5,6 moles) de 1,4-dicloro-2-buteno (98% de trans- y 2% de cis-) y 120 g (1,13 moles) de carbonato de sodio anhidro en polvo en un matraz provisto de refrigerante de reflujo, agitador, embudo de alimentación, y ter-
15 mómetro y de un sistema de calentamiento externo con agua,

Se lleva la temperatura a 80°C, y se añaden posteriormente 75 g (0,55 moles) de N-etil-m-toluidina, gradualmente (en 4 horas aproximadamente).
20

Se lleva a cabo agitación siempre a la misma temperatura, durante 5 horas más, aproximadamente. Se enfría el todo a la temperatura ambiente, y se filtran las sales, que se lavan a continuación con éter de petróleo.
25

408313



18.9.72

5 El éter de petróleo de lavado se incorpora de nuevo a la solución de filtración. Se extrae la solución en éter de petróleo con HCl 0,5 normal (dos veces con 125 cm³) y se lava a continuación con agua. La solución clorhídrica, después de la adición del agua de lavado, contiene la N-etil-m-toluidina sin reaccionar y el producto de di-sustitución, los cuales se pueden recuperar por separado.

10 La solución residual se extrae con HCl 2 normal (una vez con 200 cm³ y cuatro veces con 100 cm³) y se lava después nuevamente con agua.

El extracto clorhídrico contiene solamente N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-m-toluidina.

15 La solución residual se somete a una extracción adicional con HCl 5 normal (dos veces con 50 cm³).

La solución en ácido clorhídrico 5 contiene la impureza cíclica.

20 El 1,4-dicloro-2-buteno sin reaccionar se recupera del residuo de extracción después que se ha separado por destilación el éter de petróleo.

25 La solución en ácido clorhídrico 2 normal, mezclada con el agua de lavado, se diluye con agua y se decolora con carbón activado; se filtra y

18.9.72

408313



se neutraliza el filtrado con carbonato de sodio anhidro en polvo.

Después de la extracción con éter de petróleo, se añade al extracto etéreo carbón activo y, una vez más, carbonato de sodio anhidro; se
5 filtra y se evapora el éter de petróleo.

Se obtiene de este modo un residuo que pesa 93,0 g (rendimiento del 75% calculado sobre la N-etil-m-toluidina de partida), que está consti-
10 tuido por N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-m-toluidina que tiene un factor acidimétrico de 99%. Esta sustancia tiene un punto de ebullición de 121°C a la presión de 0,6 mm de Hg, y un índice de refracción $n_D^{20} = 1,5598$.

15 El análisis elemental, así como los espectros infrarrojo y de resonancia magnética nuclear coinciden con la estructura del compuesto.

La reacción de cianuración para producir la N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina se puede llevar a cabo con HCN líquido, operando como -
20 sigue:

Se introducen 60 cm³ de agua, 2,4 g de CuCl y 24 cm³ de HCN líquido, a la temperatura ambiente, en un matraz provisto de refrigerante de
25 reflujo, agitador, embudo de alimentación, y termó-

408313 -7



metro, y de un sistema de calentamiento externo con agua. Se añaden después 60 g (0,268 moles) de N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-m-toluidina, durante 2 horas aproximadamente.

5 Al comienzo de la adición, se mantiene la temperatura de la mezcla de reacción a aproximadamente 40°C, y posteriormente se eleva poco a poco hasta alcanzar 65°C al final de la adición. Se lleva a cabo calentamiento durante aproximadamente 4
10 horas más, con agitación, manteniendo la temperatura a aproximadamente 75°-77°C.

Se enfría la mezcla a la temperatura ambiente y se diluye con agua; después de lo cual se filtra el precipitado así formado. Se separan 5,4
15 g de un complejo cuproso con el producto de monosustitución, el cual se filtra seguidamente.

Se neutraliza la solución con carbonato de sodio anhidro y se extrae con éter etílico. Se trata el extracto etéreo con carbón activado, una
20 vez más con carbonato de sodio anhidro, y se filtra después. Después de la evaporación del éter, se obtienen 53 g (rendimiento igual al 92%) de N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina que tiene
25 un factor acidimétrico equivalente a 99,6% y un punto de ebullición de 140°C a la presión de 0,3

25.10.72

408313



mm de Hg.

El análisis elemental y los espectros infrarrojo y de resonancia magnética nuclear coinciden con la estructura del compuesto.

5 Como alternativa, se puede llevar a cabo la reacción de cianuración con NaCN y HCl.

Se introducen, en el mismo equipo descrito anteriormente en esta memoria, 120 cm³ de agua, 30,6 g de NaCN de 97% de pureza y 2,4 g de
10 CuCl.

Enfriando a 0°C, se añaden gradualmente 63,6 g de HCl al 36%. Cuando la adición está a punto de determinar, se forma un precipitado blanco de CuCN.

15 Subsiguientemente, se añaden gradualmente 60 g (0,268 moles) de N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-m-toluidina durante aproximadamente 4 horas. Al comienzo de la adición, se mantiene la temperatura aproximadamente a 50°C; se eleva luego gradualmente a 60°C; hasta que, al final de la adición,
20 se alcanzan aproximadamente 75°C. Se agita durante aproximadamente 4 horas más a una temperatura comprendida entre 75° y 77°C. Operando como se ha descrito anteriormente en esta memoria, se obtienen
25 finalmente 52,9 g (rendimiento del 91,8%) de N-etil-

408313⁻⁷

N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina.

EJEMPLO 2

Se introducen 1.250 g (10 moles) de 1,4-
5 dicloro-2-buteno (98% de trans- y 2% de cis-) y
212 g (2,0 moles) de carbonato de sodio anhidro en
un matraz, como el del Ejemplo 1. Se lleva la tem-
peratura a 80°C y se añaden gradualmente 121 g
(1 mol) de N-etil-anilina (durante aproximadamente
10 4 horas). Se lleva a cabo agitación a la misma tem-
peratura durante 5 horas más aproximadamente. Se
enfria el total a la temperatura ambiente, se fil-
tran las sales y se lava a continuación con éter
de petróleo.

15 Se mezcla de nuevo el éter de petróleo
de lavado con la solución de filtración. La solu-
ción en éter de petróleo se extrae con HCl 0,5
normal (3 veces con 100 cm³ y 1 vez con 50 cm³) y
se lava subsiguientemente con agua. La solución
20 clorhídrica contiene la N-etil-anilina sin reac-
cionar y el producto de di-sustitución.

La solución residual se extrae con HCl
2 normal (5 veces con 200 cm³) y se lava después
nuevamente con agua.

25 El extracto clorhídrico contiene sola-

408313-7 N



mente N-etil-N-(2-buten-4-cloro)-anilina. La solución residual se somete a una extracción adicional con HCl 5 normal (3 veces con 50 cm³): la solución en ácido clorhídrico 5 N contiene la impureza cíclica. El 1,4-dicloro-2-buten-4-cloro que no ha reaccionado se recupera del residuo de extracción después de la separación del éter de petróleo por destilación.

La solución en ácido clorhídrico 2 normal, mezclada con el agua de lavado, se diluye con agua y se decolora con carbón activado; se filtra la solución y se neutraliza el filtrado con carbonato de sodio anhidro en polvo. Se lleva a cabo una extracción con éter de petróleo, se añade al extracto etéreo carbón activado y, una vez más, carbonato de sodio anhidro, se filtra, y se deja que se evapore el éter de petróleo.

Se obtiene un residuo que pesa 167,0 g (rendimiento del 80% calculado sobre la N-etil-anilina), constituido por N-etil-N-(2-buten-4-cloro)-anilina, que tiene un factor acidimétrico de 99,5%.

Tal sustancia tiene un punto de ebullición de 101°-102°C a la presión de 0,2 mm de Hg, y un índice de refracción $n_D^{20} = 1,5660$.

408313⁻⁷



El análisis elemental y los espectros infrarrojo y de resonancia magnética nuclear coinciden con la estructura del compuesto.

La reacción de cianuración para dar la
5 N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-anilina se lleva a cabo como sigue:

Se introducen 60 cm³ de agua, 2,4 g de CuCl y 24 cm³ de HCN líquido, a la temperatura ambiente, en un matraz provisto de refrigerante de
10 reflujo, agitador, embudo de alimentación, termómetro y sistema de calentamiento externo por agua. Se añaden luego 64 g (0,306 moles) de N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-anilina durante aproximadamente
2 horas. Cuando comienza la adición, se mantiene
15 la temperatura de la mezcla reaccionante a 40°C aproximadamente, y después se eleva aquélla gradualmente hasta alcanzar aproximadamente 65°C al final de la adición.

La mezcla se calienta adicionalmente du
20 rante 4 horas aproximadamente, con agitación, manteniendo la temperatura entre aproximadamente 75 y 77°C.

Se enfría luego la mezcla a la temperatura ambiente, se diluye con agua, y se filtra el
25 precipitado así formado. Se separan 5,4 g de un

408313

7 NO



complejo cuproso con el producto de mono-sustitución, que se filtran seguidamente. La solución se neutraliza a continuación con carbonato de sodio anhidro en polvo y se extrae con éter etílico. Se
5 trata luego el extracto etéreo con carbono activado y una vez más con carbonato de sodio anhidro y se filtra después.

Se obtienen, después de la evaporación del éter, 55,6 g (rendimiento del 91%) de N-etil-
10 N-(2-buten-4-ciano)-anilina, que tiene un factor acidimétrico igual a 99,8%.

El análisis elemental y los espectros infrarrojo y de resonancia magnética nuclear coinciden con la estructura del compuesto. Tal producto
15 tiene un punto de ebullición de 144^o-146^oC a la presión de 0,5 mm de Hg.

La presente solicitud que corresponde a la presentada en Italia, con fecha 8 de Noviembre de 1.971, bajo el Número 30812 A/71, se acoge a
20 los beneficios del Artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

25

18.9.72

408313



1972

5

- REIVINDICACIONES -

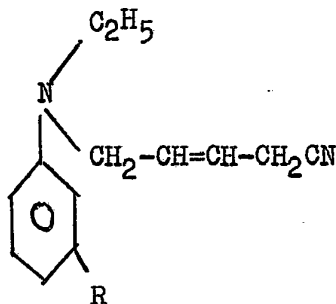
10

Los puntos de invención, propia y nueva, que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España por VEINTE años, son los siguientes:

15

1.- Un procedimiento para la preparación de compuestos que tienen la fórmula:

20



25

en la cual R es un átomo de hidrógeno o el grupo metilo, caracterizado por el hecho de que se hace

18.9.72

408313 - 7



reaccionar un N-etil-amino-benceno seleccionado de entre N-etil-anilina y N-etil-m-toluidina con trans-1,4-dicloro-2-buteno, con arreglo a una proporción molar trans-1,4-dicloro-2-buteno/N-etil-amino-benceno igual a 5 como mínimo, a una temperatura comprendida entre 20° y 120°C y a la presión atmosférica, en presencia de un agente neutralizante; por el hecho de que la masa de reacción así obtenida se somete a una primera extracción con HCl 0,5 normal, selectiva para la extracción del N-etil-amino-benceno sin reaccionar y del producto de di-sustitución, y el residuo se somete a una segunda extracción con HCl 2 normal, selectiva para el N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-amino-benceno; y por el hecho de que a partir de la solución en ácido clorhídrico 2 normal así obtenida, se aíslan, después de neutralización, N-etil-N-(2-buteno-4-cloro-anilina o, respectivamente, N-etil-N-(2-buteno-4-cloro)-m-toluidina de acuerdo con técnicas conocidas, y se transforman después por cianuración en N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-anilina o, respectivamente, N-etil-N-(2-buteno-4-ciano)-m-toluidina.

2.- Un procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de

25
25.10.72

408313



1972

que la temperatura de reacción se mantiene preferiblemente a aproximadamente 80°C.

3.- Un procedimiento de acuerdo con las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado por el hecho de que la proporción molar trans-1,4-dicloro-2-buteno/N-etil-amino-benceno es preferiblemente de 10 aproximadamente.

4.- Un procedimiento de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores 1, 2 y 3, caracterizado por el hecho de que el agente neutralizante se selecciona del grupo que comprende carbonato de sodio anhidro, carbonato de potasio anhidro, y óxidos anhidros de magnesio y de calcio.

5.- Un procedimiento de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por el hecho de que el agente neutralizante se emplea con arreglo a cantidades iguales como mínimo a 1 equivalente por cada mol de N-etil-anilina o de N-etil-m-toluidina.

6.- Un procedimiento de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por el hecho de que dichas N-etil-anilina ó N-etil-m-toluidina se emplean como agente neutralizante en una cantidad en moles que es como mí-

25
18/9.72

408313
-7 NOV 1972



mo el doble de la cantidad estequiométrica.

5 7.- Un procedimiento de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por el hecho de que se lleva a cabo en presencia de disolventes inertes no miscibles con el agua.

10 8.- Un procedimiento de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por el hecho de que se lleva a cabo en presencia de un disolvente seleccionado de entre éter de petróleo, tolueno, xileno y clorobenceno.

15 9.- Un procedimiento para la preparación de N-etil-n-(2-buten-4-ciano)-amino-bencenos.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de veinticinco hojas escritas a máquina por una sola de sus caras

Madrid,
P.A.

7 NOV. 1972

Alberto de Elzaburu
Por Poder

18.9.72