



1948

185845

Case 11510.-

- 5 NOV. 1948

185845

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

CERTIFICADO DE ADICIÓN

a la

PATENTE DE INVENCION

Nº 169.876, expedida el 16 de mayo de 1945

en

ESPAÑA

por VEINTE años

a nombre de AMERICAN CIANAMID COMPANY, entidad norteamericana, establecida en 30 Rockefeller Plaza, Nueva York, N.Y. Estados Unidos de América, por: Un procedimiento para preparar melamina, por:

"MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL".

El presente invento se refiere a la preparación de melamina partiendo de urea, y más especialmente a un procedimiento perfeccionado que permite realizar dicha conversión más eficazmente.

5

Al producir melamina de urea, ésta última se calienta por lo común a temperatura entre 270 y 500°C en presencia de amoníaco. Este calentamiento descompone la urea



185845

5 con formación de melamina y productos tales como ácido cianúrico, ammeline, ammeline, biuret, ciamelida, cianurato aménico y otros varios productos no volátiles como ácido cianico y acaso otros materiales de composición desconocida. Así la  
10 conversión de urea en melamina tiene lugar mediante una serie de reacciones oscuras con la formación de gran número de intermediarios que deben convertirse últimamente en melamina para que el procedimiento sea realizable. La conversión de estas combinaciones intermedias en melamina es difícil, y si se ha  
15 conseguido antes algún éxito, ha sido en primer término por el uso de largos períodos de reacción. Evidentemente el uso de estos largos períodos es muy caro y además desventajoso. Por ejemplo, la melamina primeramente formada en la mezcla de reacción tiende a descomponerse formando insolubles, cuerpos  
20 de color y otras impurezas. También se han experimentado ciertas dificultades anteriormente al convertir urea en melamina por procedimientos continuos. La principal dificultad ha sido la tendencia de la melamina a formar un sólido impermeable y muy adherente que tiende a revestir las paredes laterales del recipiente, y eventualmente da por resultado la  
25 obstrucción del tipo de aparato necesario para esta operación continua.

Un objeto de este invento es ofrecer un procedimiento de convertir urea en melamina rápida y eficazmente.

25 Otro objeto de este invento es convertir urea en melamina con alto grado de eficacia, y reduciendo al mínimo su descomposición y la consiguiente formación de contaminantes indeseables.



185845

Otro objeto del invento es ofrecer un procedimiento de convertir urea en melamina continuamente, reduciendo al mínimo las dificultades debidas a la tendencia de la melamina a concrecionar en una torta impermeable y muy adherente.

5

Se ha descubierto ahora que si se realiza la conversión de urea en melamina haciendo pasar la urea, y los productos de descomposición térmica de la misma que puedan formarse, por una columna empacitada mantenida a temperatura de 270-500°C, la formación de melamina puede efectuarse más rápidamente y con mayor eficiencia, y con menos descomposición de la melamina, al paso que se evitan las dificultades debidas a la concreción de ésta en una torta impermeable y muy adherente.

10

15

El procedimiento del invento ofrece más eficaz contacto del amoníaco y la urea y sus productos de descomposición que deben amonizarse para dar por resultado la formación de melamina. Esto acorta considerablemente el tiempo necesario para la reacción y reduce al mínimo la cantidad de descomposición de melamina, con lo cual no sólo se obtiene rendimientos más altos, sino que la melamina obtenida está contaminada con menos impurezas. Además, el uso de una columna empacitada es especialmente útil para separar el producto en el estado de vapor barriendo el reactor con amoníaco. Esto no sólo reduce la tendencia de la melamina a descompensarse, sino que evita las dificultades debidas a la concreción de la melamina en una torta impermeable y muy adherente al pasar del estado líquido al sólido.

20

25

Para dar una indicación del grado mayor de pureza de la melamina obtenida por el procedimiento del presente in-



185845

vente en comparación con el producto obtenido por otros procedimientos de conversión de urea en melamina, se han hecho ensayos poniendo la urea en un tubo vertical y empleando las mismas condiciones, salvo en cuanto a la empaquetadura. En  
5 estos experimentos, en que no se empleaba empaquetadura en el tubo, la melamina obtenida resultó tener sólo 86% de pureza, y contener 8.6% de materiales insolubles en agua, tales como ácido cianúrico, ammelinea, y ammellida y 2.6% de urea. Por otra parte, el uso de empaquetadura dió un producto que era  
10 en 97% melamina y contenía sólo 2.6% de insoluble en agua y 0.3% de urea.

Al convertir urea en melamina, no es necesario añadir amoníaco, sino que lo único preciso es calentar la urea a las mencionadas temperaturas de 270-500°C. en un reactor  
15 cerrado. En tales condiciones, algo de urea se descompone formando una cantidad de amoníaco suficiente para convertir la urea restante en melamina. Que la presencia de amoníaco es necesaria para la producción de melamina se demuestra por el hecho de que al calentar urea en un reactor abierto, dejen-  
20 do así escapar el amoníaco formado por la descomposición de la urea, no se forma cantidad apreciable de melamina. Por otra parte, es muy deseable emplear adición de amoníaco, y aun más, emplearlo en tales cantidades que dé una presión por lo menos 14 kg/cm<sup>2</sup>, o con preferencia una presión de por lo  
25 menos 52.5 kg./cm<sup>2</sup>. Si se quiere, pueden emplearse con ventaja presiones del orden de 70 kg./cm<sup>2</sup> y más altas. El uso de estas altas presiones de amoníaco no sólo sirve para convertir la urea más completamente en melamina, sino también



185845

5 para impedir la descomposición de melamina que fácilmente ocurre a tan altas temperaturas. Esta descomposición de la melamina se debe en primer término a su desaminación que da por resultado la formación de materiales tales como melam,  
10 melam y melom. Con presiones de amoniaco del orden de 70 kg./cm<sup>2</sup>, no hay suficiente descomposición de la melamina para justificar el uso de presiones de amoniaco apreciablemente más altas en vista del mayor gasto que ocasionaría el montar los aparatos más fuertes necesarios para contener dichas presiones.

15 Aunque el procedimiento del invento puede realizarse usando una gran variedad de modelos de aparatos, ejemplo de uno conveniente para realizarlo se ve en el dibujo adjunto. En él se muestra la columna empacitada 1, provista de una camisa de calentamiento 2., introduciendo los gases calientes u otros agentes calentadores por la entrada 3 y extrayendose por la salida 4, que comunica con la cámara formada entre la columna empacitada y la camisa. Dicha columna contiene una sección empacitada inferior 5 mantenida en su sitio por la parrilla de sostén 6, y una sección empacitada superior 7, a su vez mantenida por la parrilla de sostén 8.

20 Dichas secciones pueden lograrse con cualquier empacitada adecuada, tal como cuentas, espirales, lana e anillos de vidrio, anillos o sillas de Raschig de porcelana y similares. Si se quiere pueden emplearse empacitaduras de diferentes tamaños en las dos secciones, y, según las dimensiones de la misma columna y otras condiciones variables como la temperatura, la presión y la proporción de paso de



185845

amoníaco empleadas, se verá que hay disposiciones óptimas  
de empaquetadura. Es también un tanto ventajoso variar  
el tamaño, forma o ambos de la empaquetadura en la profundi-  
dad de cada sección empaquetada. En el dibujo representado,  
5 se introduce urea fundida por la entrada 9 situada entre las  
dos secciones empaquetadas. Así la misma urea y sus produc-  
tos de descomposición térmica como los expresados, se cuecen  
al través de la sección empaquetada inferior, al paso que  
los productos volátiles de la descomposición térmica de la  
10 urea suben al través de la sección empaquetada superior y  
se extraen por el conducto en lo alto de la columna. El  
amoníaco se introduce en el fondo de ésta por el conducto  
inferior 11, siendo su proporción de paso controlada por la  
válvula 12. La porción cilíndrica de la columna empaqueta-  
15 da tiene como fondo la sección cónica 13, sujeta a ella por  
pernos 14, conteniendo la sección cónica un tapón de desa-  
güe 15 en su vértice. La porción cilíndrica tiene encima  
la placa 16, también sujeta por pernos 17. De igual modo  
la porción cilíndrica tiene encima la placa 16, también  
20 sujeta por pernos 17. De igual modo la porción cilíndrica  
de la mencionada camisa calentadora tiene como fondo la sec-  
ción de tronco de cónico 18 sujeta por pernos 19, y lleva en-  
cima la placa 20 sujeta por pernos 21. La mencionada en-  
trada de urea 19 va sujeta a la porción cilíndrica de la co-  
25 lumnna empaquetada 1 mediante roscas 22, y un ferre 23 va su-  
jete a dicha entrada por los medios ordinarios, pasando todo  
el conjunto de conducto y ferre por el espacio calentador con  
camisa al través de la sección tronco-cónica 24 que se repre-



185845

5  
senta como parte integrante de la columna empaquetada y va sujeta al interior de la camisa por medio de su brida 25 y los pernos 26. Así se tiene un aparato para realizar el procedimiento del invento, que puede desmontarse fácilmente, por ejemplo para limpiarlo, cargarlo de nuevo y similares y volverle a montar.

10  
Al realizar el procedimiento del invento con el aparato representado en el dibujo y arriba descrito se introducen urea, con preferencia en forma fundida, por la entrada -o- en la columna empaquetada 1, y se deja coilar al través de la sección empaquetada 5 junto con cualesquiera productos de su descomposición térmica que se formen. Toda la columna se mantiene a temperatura entre 270 y 500°C, con preferencia entre 350 y 400°C. Estas temperaturas se alcanzan por calentamiento de la columna empaquetada haciendo pasar gases  
15  
calientes por el espacio formado entre la camisa 2 y la pared exterior de la columna 1, introduciéndose los gases por la entrada 3 y retirándose en la salida 4. Se introduce amoniacco, en la entrada 11 para fluir hacia arriba por la porción empaquetada 5 y en contracorriente con respecto a dicha urea fundida que coila y a sus productos de descomposición.  
20  
Al pasar por la sección empaquetada inferior, el amoniacco entra en la superior 7, pasando junto con cualesquiera productos volátiles de descomposición presentes de la urea, y luego se extrae por el conducto 10 para ser filtrado o prepararse de otro modo para la nueva circulación.  
25

Aunque pueden emplearse condiciones de funcionamiento tales que la melamina formada se recoja en la sección



185845

cónica inferior 13, de la cual se puede retirar quitando el tapón de desague 15, es preferible emplear condiciones de temperatura y presión de amoníaco que permitan extraer la melamina como vapor por el citado conducto 10. Estas condiciones suponen altas temperaturas y una proporción lo bastante alta de paso de amoníaco para producir un efecto de barrido. La melamina se separa fácilmente como vapor a temperatura tan baja como 270°C, siempre que se obtenga dicho efecto de barrido y se disponga una presión no muy superior a 14 Kg./cm<sup>2</sup>. Por otra parte si se emplea una presión tan alta como 52'5 Kg. ó 70 Kg./cm<sup>2</sup>, se necesita una temperatura de por lo menos 350°C, para que la melamina pueda separarse barriendo el sistema con amoníaco.

Aunque el presente invento no debe interpretarse como limitativo por explicaciones teóricas se cree que al introducir la urea en una cámara de reacción mantenida los citados 270-500°C., la urea se descompone rápidamente formando materiales tales como ácido cianúrico, ammeline, ammeline, biuret, cianerida, cianurato amónico y tal vez otros varios materiales no volátiles junto con materiales volátiles, por ejemplo ácido cianico. Se cree que todos estos materiales son intermediarios en la formación de melamina, estando en su mayor parte en varios períodos de amonización. Estos, por tanto, requieren ulterior contacto con amoníaco, y a este respecto el procedimiento del invento ofrece particular ventaja. Los experimentos han demostrado que el uso de una columna empacitada ofrece un contacto muy eficaz de dichos intermediarios y el amoníaco necesario para su amonización.



185845

5 particularmente cuando el amoniaco se hace pasar en contra-corriente con respecto a la urea y los intermediarias no volátiles que cuelan. Así la conversión en melamina se acelera grandemente por el uso de empaquetadura. Este se cree que también es cierto en cuanto a los productos de descomposición volátiles de la urea que pasan por la empaquetadura juntamente con el amoniaco, poniendo en mejor contacto los gases que resultan de la turbulencia que prevalece como resultado de la empaquetadura.

10 Esta solicitud que corresponde a la presentada en los Estados Unidos de América, el 6 de noviembre de 1947, bajo el número 784.374, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto de Propiedad Industrial.

- N O T A -

15 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de este Certificado de Adición en España, por VEINTE años, son los siguientes:

20 1º.- Un procedimiento de producir melamina caracterizado por hacer pasar la urea por una columna empaquetada mantenida a 270-500°C. en presencia de amoniaco.

2º.- Un procedimiento según se reivindica en el punto 1º, caracterizado por el hecho de que la reacción se efectúa en presencia de amoniaco en presión de por lo menos 14 Kg. por  $\text{cm}^2$  y con preferencia a por lo menos 53 Kg. por  $\text{cm}^2$ .



185845

3º.- Un procedimiento según se reivindica en los puntos 1º o 2º, caracterizado por barrer con amoniaco la columna empacuetada, con lo cual se forma y vaporiza melamina, y esta se condensa y recupera.

5

4º.- Un procedimiento según se reivindica en los puntos 1º o 2º, caracterizado porque se cuele la urea y sus productos de descomposición no volátiles por una porción de la columna empacuetada haciendo pasar los productos de descomposición volátiles de la urea por otra porción de dicha columna, y barriende con amoniaco la columna, con lo cual se forma y vaporiza melamina, que se condensa y recupera.

10

5º.- Un procedimiento según se reivindica en el punto 4º caracterizado porque se cuelean la urea y sus productos de descomposición no volátiles al través de la primera porción de la columna empacuetada, que hacen pasar los productos de descomposición no volátiles de la urea hacia arriba al través de la segunda porción de la columna empacuetada y ésta se barre hacia arriba con amoniaco.

15

6º.- Mejoras introducidas en el objeto de la Patente Principal.

20

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede representada en el dibujo que se acompaña y con los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de diez hojas escritas por una sola cara.

25

Madrid, - 5 NOV. 1948

P. A.

Alberto de Elizaburu

Por Poder



185845 - 59040

185845

