

PATENTE DE INVENCION

=====

PMO No. 3198.

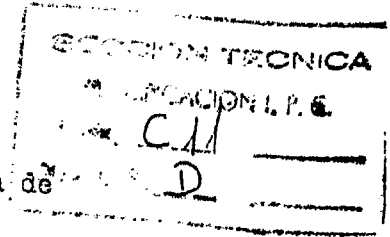
364754
13 MAR 1959



Memoria Descriptiva

sobre:

"Procedimiento para la obtención de tetraacetil diaminas".



Solicitante: EMC CORPORATION, entidad norteamericana, residente en: 633 Third Avenue, New York, New York, EE.UU. de A.

=====

Esta invención se refiere a un proceso para producir derivados de tetraacetil diaminas. Los productos son útiles como componentes de composiciones para lavar y blanquear.

5.

La N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina fue

**POOR
QUALITY**



preparada por Franchimont y otros, Rec. Trav. Chim.

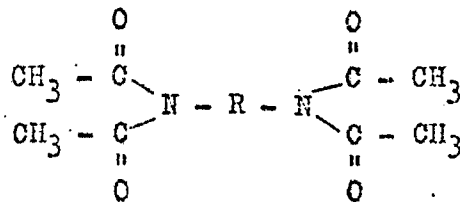
Vol. 30, páginas 183-185 (1911) al reaccionar diacetil-etilendiamina con anhídrido acético a 130-140°C, durante varias horas. La Patente de EE.UU. No. 3.223.732 dá a cono-

5. cer la preparación de N,N,N',N'-tetraacetil-etilendiamina al reaccionar cetona con N,N'-diacetilmetilendiamina en presencia de un catalizador de ácido p-toluenosulfónico.

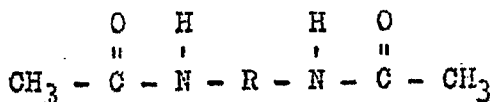
La Patente de EE.UU. No. 3.228.983 dá a conocer esencialmente la misma reacción realizada a temperaturas entre 100°C, y 200°C, con un catalizador de ácido sulfúrico.

10. Estos métodos generalmente producen bajos rendimientos de un producto crudo impuro que requiere extensa purificación.

La presente invención es dirigida a un proceso para producir derivados de tetraacetil diaminas de fórmula general:



20. en la que R tiene la estructura definida más adelante, al reaccionar cetona con (1) un derivado diacetílico de una diamina de fórmula general:



25. en la que R es (a) un grupo espaciador de hidrocarburo alifático que tiene de 1 a 3 átomos de carbono entre los átomos de N de los extremos, grupo que puede tener sub-
30. tituyentes unidos al mismo, que incluyen grupos alifáticos



- y cicloalifáticos que tienen hasta 16 átomos de carbono, grupos fenilo o fenilo substituído, ó (b) un grupo espaciador aromático que puede ser un grupo fenileno o fenileno substituído; o (2) una diamina de fórmula $H_2H-R'-NH_2$, en la que R' es un grupo espaciador idéntico a R pero que contiene cuando menos dos átomos de carbono; usando ácido fosfórico, (de preferencia ácido ortofosfórico), como catalizador, y realizando la reacción a una temperatura entre 40°C, y 100°C, aproximadamente. Es preferible que la mezcla de reacción contenga una pequeña cantidad efectiva de azufre o un compuesto de azufre.
- 5.
- 10.

- De esta manera, por ejemplo, la tetraacetiletilendiamina es producida al reaccionar cetona con etilendiamina ó diacetilendiamina. La tetraacetilmetilendiamina, sin embargo, es producida al reaccionar cetona con diacetilmetilendiamina. Aún cuando podría parecer posible producir N,N,N',N' -tetraacetilmetilendiamina por reacción de cetona con el compuesto de diamina matriz, ese compuesto, por ejemplo, metilendiamina, no es un material disponible.
- 15.
- 20.
- Otros reactantes de amina ilustrativos incluyen butileno-1,2-diamina, butileno-1,3-diamina, 2-metilbutileno-1,3-diamina, 1-metiletilendiamina, diacetilbencilendiamina y fenilendiamina. Aún cuando la especificación discute largamente y explica la invención en términos de los reactantes y productos de "etileno", ha de entenderse que la divulgación se aplica a la familia de reactantes de diamina definidos y los productos de tetraacetilo producidos de los mismos por el proceso de la presente invención.
- 25.

- La reacción entre la diamina y la cetona para formar derivados de tetraacetilo es una reacción por eta-
- 30.



pas. Cuando se reacciona etilendiamina con cetona, se forma la diacetiletildiamina, probablemente seguido por la formación de la triacetiletildiamina y luego la tetraacetiletildiamina. El compuesto de diacetilo puede así mismo producirse por la reacción de la diamina con cetona aún en ausencia de un catalizador. El compuesto de diacetilo puede asimismo prepararse por otros métodos como,

5. por ejemplo, por la reacción de formaldehído con acetamida, dada a conocer en la Patente de Los Estados Unidos

10. 3.228.983. La reacción de cetona con diacetiletildiamina para formar el producto de tetraacetilo requiere la presencia del catalizador de ácido fosfórico para obtener el producto de alta calidad y altos rendimientos característicos del proceso de la presente invención.

15. Cuando la reacción no es realizada a término, la mezcla de reacción contendrá el intermedio triacetilo así como el producto tetraacetilo deseado. La relación de reacción disminuye considerablemente al final de la reacción cuando la concentración del intermedio de triacetilo

20. en la mezcla de reacción es baja. La reacción puede realizarse como un proceso por cargas ó de un proceso continuo. Al funcionar como un proceso por cargas, es más económico parar la reacción antes de terminar y reciclar el intermedio de triacetilo sin reaccionar al recipiente

25. de reacción para la siguiente carga. El proceso continuo evita grandemente este problema y es preferido.

30. El catalizador de ácido fosfórico es utilizado en pequeñas cantidades efectivas. Aún cuando pequeñas cantidades del catalizador de ácido fosfórico resultan en un proceso útil, se obtienen relaciones de reacción más



13 MAR. 1969

rápidas cuando se usa cuando menos 2 % aproximadamente, basado en el reactante de amina. Es preferido usar entre 4 y 5 % aproximadamente. Pueden usarse cantidades mayores del catalizador pero no tienen efecto benéfico adicional.

5. Para fines prácticos, no se utilizan más que un 10 % de ácido fosfórico como el catalizador, es preferido el ácido ortofosfórico para producir directamente productos de alta calidad y color claro. Los otros ácidos fosfóricos tienden a producir productos con características de color
10. menos deseables, por ejemplo, pueden tener un color limpio transparente ó aún canela, que requiere purificación para obtener las características de producto de calidad superior.

15. La reacción se realiza de preferencia en un disolvente. Pueden usarse un gran número de disolventes orgánicos. Los mejores disolventes son aquellos que disuelven cantidades suficientes del producto de tetraacetilo, así como los productos de reacción intermedia antes descritos. Los disolventes preferidos son cloroformo, acetona, tolueno, los acetatos de alquilo y particularmente los acetatos de alquilo inferior, los disolventes aromáticos clorados y particularmente los compuestos de monoclicarilo y biclicarilo clorados, tal como los clorobencenos y los cloronaftalenos. Se han obtenido resultados
20. óptimos con cloroformo.
- 25.

- La reacción es realizada de preferencia a temperaturas entre 40°C y 100°C, aproximadamente, dependiendo en gran medida del punto de ebullición del disolvente utilizado. Las relaciones de reacción disminuyen considerablemente si se emplea una temperatura de reacción infe-
- 30.



13 MAR. 1969

rrior a 40°C. Las temperaturas superiores a 100°C. aproximadamente incrementan la formación de sub-productos, redundando en rendimientos inferiores del producto deseado. La reacción es realizada de manera preferente a una temperatura entre 50°C y 95°C.

5. Se ha descubierto que la presencia de azufre en la mezcla de reacción tiende a incrementar el rendimiento y mejorar la calidad del producto. El efecto de la adición de azufre es más pronunciado en operación continua como es aparente del Ejemplo 6 de la presente. Aún cuando son útiles pequeñas cantidades efectivas, tan pequeñas como 0,2 % de azufre, es preferido usar cuando menos 1 % en peso, basado en el reactante amina. Pueden usarse cantidades mayores pero no demuestran tener efecto benéfico adicional. El azufre elemental, aunque es efectivo, tiene el inconveniente de que el producto obtenido tiene un ligero olor que es fácilmente eliminable por tratamiento al vacío. El uso de compuestos de azufre tal como fenotiazina y tio-m-cresol de metilo logra la mejora de reacción deseada sin ocasionar olor.
- 10.
- 15.
- 20.

Los siguientes ejemplos ilustran más la invención. Todas las partes ó los por cientos especificados en la solicitud son en peso.

EJEMPLO 1.

25. Un matraz de tres cuellos, de 3000 ml. con indentaciones de división, equipado con un agitador de laboratorio, un termómetro y un condensador, fué cargada con 1,200 ml. de cloroformo, 120 gramos (2 moles) de etilendiamina y 7 gramos de ácido ortofosfórico. La mezcla
30. fué agitada y calentada a 50-55°C., y fué introducida ce-

13 MAR. 1969



- tona a través de un tubo de entrada con un caudal de 0,0337 mol por minuto, durante cuatro horas. La reacción fué luego enfriada a -8°C . con buena agitación. Los sólidos fueron separados por filtración, lavados dos veces con cloroformo frío a -20°C . y luego secados bajo presión reducida en un evaporador para dar 332 gramos de producto blanco y cristalino de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina. El disolvente fué luego evaporado del licor madre para proporcionar una cantidad adicional de 82 gramos de producto, resultando un rendimiento total de producto de 87 %.

- Se repitió el procedimiento anterior con excepción de que fueron usados 7 gramos de ácido sulfúrico en lugar de los 7 gramos de ácido ortofosfórico. Fueron obtenidos 266 gramos de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina para un rendimiento de 59 %. El experimento fué asimismo repetido usando 7 gramos de ácido p-toluensulfónico en lugar de los 7 gramos de ácido ortofosfórico, para obtener 290 gramos de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina cruda para un rendimiento de 61 %. En cada uno de estos dos últimos casos el producto crudo fué un material de incolor.

EJEMPLO 2.

- Se utilizó el procedimiento y el aparato del Ejemplo 1, sin el uso de ácido alguno. Se observó un consumo completo de la cetona en las primeras dos horas de operación, después de lo cual se paró el consumo de cetona. Después de filtración de la mezcla de reacción, fueron recogidos 212 gramos de sólidos blancos y cristalinos. Estos fueron secados y analizados y se comprobó que eran de N,N'-diacetiletildiamina. Se obtuvo una cosecha adi

13 MAR. 1969



cional de 72 gramos de este producto por evaporación del disolvente bajo presión reducida. El rendimiento total de N,N'-diacetiletildiamina fué de 99,2 %.

EJEMPLO 3.

5. Se utilizó el mismo aparato del ejemplo 1,-
El matraz fué cargado con 1,500 ml. de acetona, 45 gramos de N,N'-diacetiletildiamina y 2 gramos de ácido ortofosfórico como el catalizador. La mezcla de reacción fué agitada y calentada a 50°C., y luego fué introducida cetona dentro de la mezcla de reacción a una proporción de 0,031 mol por minuto, por 20 minutos. La mezcla de reacción, después de ésta, fué prácticamente incolora, mostrando una lectura de menos de "1" sobre la escala de color Gardner. (Las Normas de Color Gardner para líquidos son un juego de 18 soluciones; la más oscura, "18", es igual en intensidad a una solución de 3 gramos de dicromato de potasio en 100 ml. de ácido sulfúrico concentrado. Cada solución es 50 % más oscura que la solución anterior). El ácido fué neutralizado con carbonato sódico anhidro seco. La mezcla de reacción fué filtrada para eliminar el exceso de carbonato sódico anhidro y el fosfato de sodio formado en la etapa de neutralización, y el filtrado fué evaporado para eliminar el disolvente de acetona. La N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina cruda mostró menos del color "1" en la Escala Gardner en una solución de 10 % en cloroformo. Fueron obtenidos 73,6 gramos del producto crudo indicando un rendimiento prácticamente cuantitativo.
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.
30. Se utilizó el mismo procedimiento y aparato con excepción de que se usó 1 ml. de ácido sulfúrico concentra-



do en lugar de los 2 gramos de ácido ortofosfórico.

5. El proceso resulto en la producción (después de recristalización en tolueno y lavado con hexano) de un rendimiento de 22 % de cristales amarillos de N,N,N',N'-tetraacetil-etilendiamina. El producto mostró una lectura de "4,5" en la escala Gardner en una solución de 10 % en cloroformo. Una operación similar se realizó con excepción de que el ácido ortofosfórico fué reemplazado por 2 gramos de ácido p-toluensulfónico, para producir, después de purificación,
10. 26,6 gramos de un producto color crema (37 % rendimiento) mostrando un color de "2" en la escala Gardner en una solución de 10 % en cloroformo.

EJEMPLO 4.

15. Se repitió el procedimiento del Ejemplo 3, con la excepción de que se usó acetato de etilo como disolvente de reacción en lugar de la acetona. Los resultados fueron generalmente similares a los descritos en el Ejemplo 3. Los productos obtenidos usando el catalizador de ácido ortofosfórico mostraron un color Gardner de menos de "1". El producto correspondiente para la operación en que se usó ácido sulfúrico, tenía un color Gardner de "8,5" y el de la operación en que se usó ácido p-toluensulfónico tenía un color Gardner de "3,5".
- 20.

EJEMPLO 5.

25. Se utilizó el aparato descrito en el Ejemplo 1. El matraz fué cargado con 1200 ml. de tolueno, 36 gramos de la N,N'-diacetiletildiamina y 1 ml. de ácido ortofosfórico. La mezcla de reacción se calentó a 95°C. con buena agitación y fué introducida cetona dentro de la
30. mezcla de reacción con un caudal de 0,0206 mol por minuto

13 MAR. 1969



por 30 minutos mientras se mantiene la temperatura a 94-95°C. Después de pararse el flujo de cetona, la mezcla de reacción fué agitada durante 5 minutos más, y luego enfriada a 2°C. Los cristales formados fueron filtrados y lavados con hexano, resultando 31,5 gramos de sólidos. El licor madre fué evaporado dando otros 21,2 gramos de una segunda cosecha del producto, para un rendimiento total de 91 % de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina.

EJEMPLO 6.

10. Un matraz de cuatro cuellos, de 3000 ml., con indentaciones de división, fué equipado con un agitador de laboratorio y un tubo de entrada de cetona, similar al descrito en el Ejemplo 1. El tercer cuello fué conectado a un ramal lateral con una probeta para carga etilendiamina en una abertura y un condensador en la otra. El cuarto cuello fué usado para sacar el producto durante la operación. El matraz fué cargado con 1200 ml. de cloroforno, 350 gramos de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina, 10 gramos de N,N'-diacetiletildiamina y 10 gramos de ácido ortofosfórico, dando un volumen total en el matraz de reacción de 1500 ml. aproximadamente. La mezcla de reacción fué calentada a 60°C., y mantenida a ésta temperatura durante la operación por medio de un baño de agua caliente.
- 15.
- 20.
25. La probeta se llenó con etilendiamina comercial, ensaye 98-98,6 %, diluída con un volumen igual de cloroforno. La etilendiamina fué cargada dentro de la mezcla de reacción a un gasto de 0,27 mol por hora, mientras se carga de manera simultánea cetona con un caudal de 1.092 moles por hora. Una parte alícuota de 150 ml. de la mez-
- 30.



13 MAR 1969

- cla de reacción se retiró del matraz de reacción cada 30 minutos. Esta parte alicuota se enfrió a 25°C, y fue filtrada. Los sólidos recogidos en el filtro fueron secados en un evaporador y pesados. El licor madre fue reciclado dentro del matraz de reacción. Una pequeña purga, aproximadamente 5 %, fue retenida y fue reemplazada con cloroforno fresco. La purga fue evaporada bajo presión reducida y el producto de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina en esta purga fue aislado por cristalización.
- 5.
10. Se hicieron cuatro operaciones por el proceso continuo descrito arriba. Los resultados fueron:
- OPERACION I - Esta operación fue operada siguiendo la descripción anterior durante 16 horas. En las primeras 6 horas, el producto fue obtenido como sólidos cristalinos, blancos y la mezcla de reacción era prácticamente incolora. Sin embargo, después de más de seis horas de operación, la mezcla de reacción comenzó a descolorarse y se hizo oscura después de 16 horas de operación. El producto obtenido en las últimas horas de operación
15. fue café amarillento, indicando que fueron formados en esta operación sub-productos de color. El rendimiento del producto en las primeras 6,5 horas de operación fue de 86%, pero disminuyó a 74 % después de 16 horas de operación.
20. OPERACION II - Igual a la operación I, con excepción de que fueron agregados 2 gramos de azufre a la mezcla de reacción. Esta operación, se efectuó durante 21 horas, con los siguientes resultados:
25. 1. Después de las primeras 6,5 horas de operación, se recogieron 374,4 gramos de producto cristalino y blanco. El total de etilendiamina alimentada en este pe-
- 30.


13 MAR. 1969

riodo fué de 105 gramos (1,75 moles). El rendimiento fué de 93,8 %. La mezcla de reacción era prácticamente incolora.

5. 2. Después de las segundas 6,5 horas de operación, se recogieron 373,6 gramos del producto cristalino y blanco, que corresponde a un rendimiento de 93,4 % basado sobre la etilendiamina comercial alimentada.

10. 3. Después de 8 horas adicionales de operación, se obtuvieron 460,1 gramos del producto cristalino y blanco. La alimentación de etilendiamina en este período fué de 130 gramos (2,16 moles). El rendimiento fué de 93,4 %.

15. Después de 21 horas en operación, la cantidad total del producto de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina obtenido fué de 1208 gramos, y la cantidad total de etilendiamina cargada dentro del matraz de reacción fué de 340 gramos. El rendimiento fué de 93,5 %, basado en la alimentación de etilendiamina comercial, que tenía una riqueza de 98-98,6 %. El rendimiento basado en 100 % de etilendiamina fué por tanto de aproximadamente 95 %.

20. OPERACION III - Igual a la operación II, con excepción de que se usaron 10 gramos de ácido sulfúrico como catalizador en lugar del ácido ortofosfórico. La mezcla de reacción se volvió amarilla en los primeros 30 minutos de operación y la primera cosecha de producto obtenido fué asimismo amarilla. Después de dos horas de operación, la mezcla de reacción ya estaba oscura y la operación se retiró.

25.



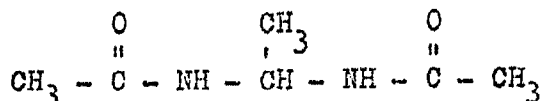
5. OPERACION IV - Igual a la Operación II, con excepción de que se usaron 10 gramos de ácido p-toluensulfónico como catalizador. La mezcla de reacción comenzó a descolorear en dos horas y la primera cosecha del producto obtenido fué de color crema, siendo las ulteriores de color amarillo. La operación fué detenida después de 6 horas de operación cuando la mezcla de reacción ya se encontraba oscura.

EJEMPLO 7.

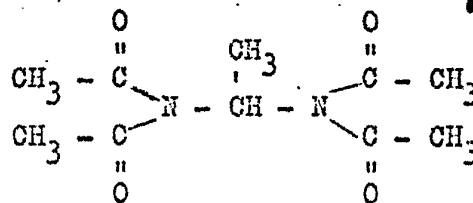
10. Se usó el procedimiento del Ejemplo 3. Sin embargo, se usaron 42 gramos de N,N'-diacetilmetilendiamina en lugar de 45 gramos de N,N'-diacetiletieldiamina. Se obtuvieron 65 gramos de N,N,N',N'-tetraacetiletieldiamina cruda con un color menor a "1" sobre la escala de Gardner en una solución de 10 % en cloroformo. El rendimiento fué de 95,6 %.

EJEMPLO 8.

20. Se usó el procedimiento del Ejemplo 3, con excepción de que se usaron como reactante 45 gramos de etilidendiaminadiacetato, de fórmula:



25. Después de evaporación del disolvente, se obtuvieron 72 gramos (rendimiento de 98,7 %) de material cristalino y blanco, que fué identificado como N,N,N',N'-tetraacetiletano-1,1-diamina de fórmula:

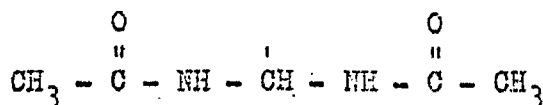


5.

EJEMPLO 9.

Se usó el procedimiento del Ejemplo 3, con excepción de que se utilizaron como reactante 65 gramos de bencilidendiaminadiacetato, de fórmula:

10.

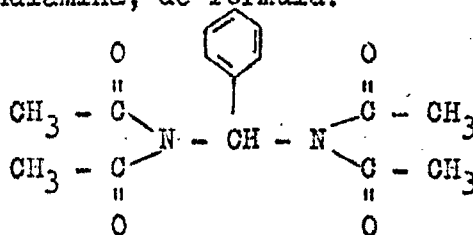


El rendimiento de producto blanco y cristalino fué de 88 gramos, que corresponde a 94,7 % basado en la alimentación.

15.

El producto fué identificado como N,N,N',N'-tetraacetilbencilidendiamina, de fórmula:

20.



EJEMPLO 10.

25.

Se usó el procedimiento del Ejemplo 2, con excepción de que se usaron como reactante 216 gramos de p-fenilendiamina purificada en lugar de los 120 gramos de etilendiamina. Se obtuvieron 370 gramos de sólidos blancos de N,N'-diacetil-p-fenilendiamina. El rendimiento fué de 96,4 % teórico.

EJEMPLO 11.

30.

Se usó el procedimiento del Ejemplo 3, con ex-



13 MAR. 1968

5. cepción de que se usaron como reactantes 60 gramos de la N,N'-diacetil-p-fenilendiamina obtenida en el Ejemplo 10. Después de evaporación del disolvente de reacción, se obtuvieron 80 gramos de producto blanco de N,N,N',N'-tetraacetil-p-fenilendiamina. El rendimiento fué de 91 % teórico.

EJEMPLO 12.

10. Se usó el procedimiento del Ejemplo 6 = Operación II = con excepción de que se sustituyeron 2 gramos de fenotiazina por azufre. Después de 21 horas de operación, el rendimiento de tetraacetiletildiamina fué de 94 % y la mezcla de reacción fué prácticamente incolora.

EJEMPLO 13.

15. Se usó el procedimiento del Ejemplo 12, con excepción de que fueron usados dos gramos de tio-m-cresol de metilo en lugar de la fenotiazina.

20. El uso de ácido ortofosfórico como catalizador en la síntesis, redundó en rendimientos superiores y mejorada pureza del producto crudo. El uso de uno de los otros ácidos fosfóricos como catalizador de reacción así mismo redundó en la producción de los productos de tetraacetilo con buenos rendimientos. Los resultados mejorados son asimismo obtenidos utilizando los otros disolventes preferidos, tal como los derivados de benceno clorados y los derivados de naftaleno clorados. Los mejores resultados fueron obtenidos con cloroformo.
- 25.

N O T A



13 MAR. 1969

Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica,

debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente

5.

indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental; también

se hace constar que el invento se refiere a una solicitud de patente presentada en Norteamérica, con fecha 13

10.

de marzo de 1968, bajo el número Ser. No. 712.597, accgiéndose por lo tanto, a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor, siendo lo que consti

tuye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España, sobre:

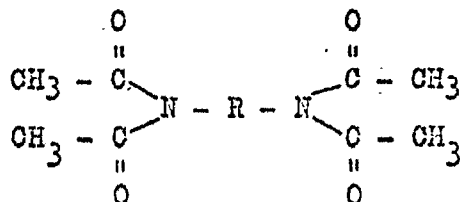
"Procedimiento para la obtención de tetraacetil diaminas";

15.

caracterizándose por lo siguiente:

1.- Procedimiento para la obtención de tetraacetil diaminas de fórmula general:

20.



en la que R significa un grupo espaciador de hidrocarburo alifático teniendo de 1 a 3 átomos de carbono entre

los átomos de nitrógeno flanqueadores, grupo que puede tener sustituyentes unidos al mismo, incluyendo grupos

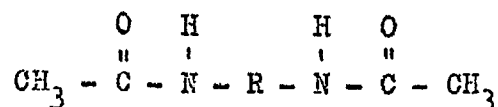
25.

alifáticos y cicloalifáticos teniendo hasta 16 átomos de carbono, grupos fenilo y fenil sustituidos ó un grupo

espaciador aromático que puede ser un grupo fenileno ó fenileno sustituido, caracterizado porque se hace reac-

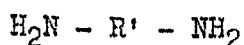
13 MAR. 1969

cionar cetona con una diacetildiamina de fórmula general:



en la que R tiene el significado anteriormente indicado.

5. 2.- Procedimiento según la reivindicación 1, ca-
racterizado porque se hace reaccionar cetona con una dia-
mina de fórmula:



10. en la que R' es un grupo espaciador idéntico a R pero
teniendo cuando menos 2 átomos de carbono, en presencia
de una cantidad pequeña pero efectiva de ácido fosfórico,
de preferencia ácido ortofosfórico, como catalizador a
una temperatura de 40°C a 100°C, aproximadamente, de pre-
ferencia de 50°C a 95°C.

15. 3.- Procedimiento según la reivindicación 2, ca-
racterizado en que la mezcla de reacción contiene asimis-
mo una cantidad pequeña pero efectiva de azufre ó de un
compuesto de azufre.

20. 4.- Procedimiento según la reivindicación 3, ca-
racterizado en que el compuesto de azufre es fenotiazina
ó tio-m-cresol de metilo.

5.- Procedimiento según las reivindicaciones 1
a 4, caracterizado en que la mezcla de reacción contiene
asimismo un disolvente orgánico.

25. 6.- Procedimiento según la reivindicación 5, ca-
racterizado en que el disolvente orgánico es cloroformo,
acetona, tolueno, un acetato de alquilo, ó un compuesto
clorado monocíclicarilo ó bicíclicarilo.

30. 7.- Procedimiento según las reivindicaciones 1
a 6, caracterizado en que R y R' son CH₂CH₂-.



13 MAR. 1969

8.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 a 7, caracterizado en que el catalizador de ácido fosfórico está presente en la cantidad de 1 % a 10 % aproximadamente basado sobre el reactante de amina.

5.

9.- Procedimiento para la obtención de tetraacetil diaminas; tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.

Esta Memoria consta de dieciocho hojas escritas a máquina, por una sola cara.

13 MAR. 1969

Madrid,

EMC CORPORATION.

L. GOMEZ ACEBO Y MUDEI

Por el Firmado: F. Hernández Pittz