



PATENTE DE INVENCION

412438

Le A 14 271-Sp.

4 12438

F.C. 2-4-75

Int. Cl.: C07C

Memoria Descriptiva

sobre:

PROCEDIMIENTO PARA LA PRODUCCION DE 4-NITROSO-DIFENILAMINA.-

Solicitante: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT, entidad alemana, residente en Leverkusen-Bayerwerk, República Federal Alemana.-

- Según procedimientos generalmente conocidos, la 4-nitroso-difenilamina se forma por transposición de N-nitroso-difenilamina en presencia de ácido clorhídrico alcohólico. Con ésto, la 4-nitroso-difenilamina se presenta en forma de su sal de hidrocioruro.
- 5.



5. Si se realiza la reacción a gran escala industrial, ocurren a veces descomposiciones espontáneas incontrolables. Se supone que los cristales del hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina son térmicamente inestables, si en la pasta cristalina formada durante la reacción llegan a producirse recalentamientos locales. Esto ocurre siempre cuando el elevado calor de reacción no es suficiente y uniformemente descargado y es adicionalmente aumentado por la ligera adhesión de los cristales a las superficies interiores del recipiente de reacción. La consecuencia de tal descomposición, en la cual son liberadas aproximadamente 18 kilocalorías por mol de 4-nitroso-difenilamina. HCl y la misma progresa inevitablemente en toda la masa de reacción, es el rebosamiento de espuma de la caldera bajo expulsión de gases nitrosos y de ácido clorhídrico gaseoso. En esto, los disolventes son eliminados por evaporación y en la caldera queda un residuo grasoso negro.

10.

15.

20. La transposición de N-nitroso-difenilamina en el compuesto 4-nitroso fué variada en muchos sentidos. Sobre todo ha de observarse severamente la exclusión de agua y de humedad, siendo que de otra manera llega a empeorarse considerablemente el rendimiento. Se describen procedimientos de una sola etapa, tales como aquel descrito en la Patente norteamericana No. 2.046.356, según el cual no solamente la nitrosación de difenilamina con nitrito de sodio, sino también la subsiguiente transposición por ácido clorhídrico son realizadas en solución metanólica absoluta. Este procedimiento, sin embargo, dá un producto de bajo punto de fusión. Además, el hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina se presenta en forma cristalina. En la Patente norteamericana-

25.

30.

412438



- na No. 2.495.774, se trata de evitar las dificultades conec-
tadas con la severa condición anhidra por la adición de clo-
ruros de ácido que en la reacción con agua hacen que se for-
me ácido clorhídrico. La Patente norteamericana No. 2.782.235
5. describe un procedimiento, en el cual la transposición es
realizada en un alcohol que contiene más de 2 átomos de car-
bono. Entonces puede emplearse hasta ácido clorhídrico acuoso.
Este modo operativo, sin embargo, tiene considerables desven-
tajas. Los rendimientos disminuyen, operaciones complicadas
10. de purificación son necesarias, la recuperación del disolven-
te es difícil y la cantidad reaccionada, calculada sobre el
ácido clorhídrico, es extremadamente baja. Trata de subsanar
estas desventajas la Patente norteamericana No. 3.429.924 que
describe la transposición, partiéndose de N-nitroso-difenila-
15. mina, en un alcohol de bajo peso molecular, en cuyo procedi-
miento por inyección, mediante una bomba, del material de par-
tida fundida, se logra una suspensión fina en el alcohol. Si
bién de esta manera se obtienen buenos rendimientos, pero
también en este caso se forma el hidrocioruro de 4-nitroso-
20. difenilamina como una pasta cristalina. Además de una elabo-
ración complicada, como desventaja ulterior, se presenta
la necesidad de tener que aplicar N-nitroso-difenilamina ais-
lada.
25. Todos esos procedimientos de referencia para la
producción de 4-nitroso-difenilamina son llevados a cabo en
un modo operativo discontinuo y tratan de lograr una reacción
en lo posible cuantitativa. Durante las reacciones arriba men-
cionadas, el hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina se forma
en estado cristalino y causa las desventajas al principio des-
30. critas.

412438



5. Ahora se ha encontrado que la descomposición de los cristales del hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina puede ser evitada, si se procura que el hidrocioruro formado en la reacción no se precipite de la solución. Si bien una descomposición lenta del hidrocioruro, al trabajarse en soluciones, ya comienza en un momento mucho más temprano, pero se aguanta esta desventaja, en vista de que no ocurren descomposiciones de desarrollo incontrolado, como lo es el caso si, durante la reacción, se precipitan los cristales del hidrocioruro.

10. La Figura 1, muestra la estabilidad de hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina en solución de metanol bajo adición de ácido clorhídrico, donde a 40°C la proporción molar de 4-nitroso-difenilamina a ácido clorhídrico es de 1 : 2. De la Tabla I de la Patente norteamericana No. 3.429.924 puede deducirse que la descomposición de la suspensión de hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina comienza más tarde.

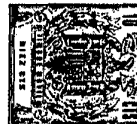
15. En vista de las descomposiciones que ocurren más temprano, al trabajarse en solución, debe procurarse que los tiempos de reacción sean más cortos posible. La velocidad de reacción a una temperatura dada de reacción y con disolventes dados, es dependiente no solamente de la concentración de la N-nitroso-difenilamina, sino también de aquella del ácido clorhídrico. A fin de lograr por una alta velocidad de reacción un tiempo corto de reacción, a una temperatura dada de reacción, por un lado, puede aumentarse la concentración del ácido clorhídrico, debiendo adaptarse la cantidad de alcohol de tal modo que el hidrocioruro que se forma, quede disuelto. Por otro lado, puede aplicarse una concentración elevada de la N-nitroso-difenilamina y efectuarse intencional-

20.

25.

30.

412438



mente la transposición de tan solo una parte, vale decir, realizar la reacción con reducida cantidad reaccionada.

5. Así, la invención se refiere a un procedimiento para la producción de 4-nitroso-difenilamina a partir de N-nitroso-difenilamina por transposición en una solución alcohólica de ácido clorhídrico, eventualmente en mezcla con un disolvente orgánico inmiscible con agua, caracterizado porque se impide la separación por cristalización del hidrocioruro de 4-nitroso-difenilamina formado, eligiéndose las condiciones de reacción de tal modo que hidrocioruro de la 4-nitroso-difenilamina queda disuelto en el medio de reacción.

10. Si se trabaja a una concentración elevada de ácido clorhídrico, se logran rendimientos altos en tiempos cortos de reacción sin formación notable de productos secundarios. Como alcoholes pueden emplearse alcoholes lineales, ramificados y alicíclicos con 1 a 10 átomos de carbono, tales como por ejemplo metanol, etanol, propanol, isonopropanol, butanol, isobutanol, octanol, decanol o ciclohexanol; sin embargo, se prefieren los alcoholes de bajo peso molecular de esta serie, dado que en ellos la solubilidad del hidrocioruro es la más ventajosa. Los alcoholes pueden ser aplicados eventualmente en mezcla con un disolvente orgánico inmiscible con agua. Como disolventes orgánicos sean mencionados hidrocarburos aromáticos eventualmente sustituidos con 6 a 8 átomos de carbono, tales como por ejemplo benceno, tolueno, xileno, nitrobenceno o clorobenceno, así como hidrocarburos clorados con 1 a 2 átomos de carbono, tales como por ejemplo cloroformo o tetracloruro de carbono. Pero

15. la cantidad del alcohol, respectivamente de la mezcla de di-

20.

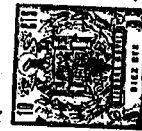
25.

30.

-412438



- solventes debe ser adaptada a la cantidad del hidrocloreto de 4-nitroso-difenilamina formado, de tal modo que queda garantizada una solución, quedando fijado el límite inferior por la solubilidad del hidrocloreto en el respectivo alcohol o en la respectiva mezcla disolvente. Sin embargo, convenientemente se trabaja con un pequeño exceso de alcohol o mezcla disolvente que, debido a la caída de la concentración de los reactivos, no puede ser extendido arbitrariamente, en vista de que de otra manera la velocidad de reacción disminuye.
5. La proporción molar de ácido clorhídrico a N-nitroso-difenilamina no está limitada hacia arriba; acaso existen límites impuestos desde el punto de vista económico, en virtud de que el ácido clorhídrico en exceso debe ser neutralizado por álcalis, e impuestos por el efecto de desalar. El límite inferior es dependiente del tiempo de reacción, de la temperatura de reacción y del disolvente elegido. Por cada mol de N-nitroso-difenilamina se emplea preferiblemente hasta 20 moles de ácido clorhídrico, de preferencia bien especial, hasta 10 moles de ácido clorhídrico. El contenido del ácido clorhídrico en la solución alcohólica o la mezcla disolvente asciende preferiblemente a entre 1% en peso y el valor determinado por la solubilidad en el correspondiente alcohol o en la mezcla. El tiempo de reacción asciende a hasta 4 horas, preferiblemente a hasta 2 horas; se ajusta a las elegidas temperaturas de reacción es de entre 0° y 65°C, preferiblemente entre 15° y 55°C. Cuanto más alta se elige la temperatura de reacción, tanto más cortos serán los tiempos de reacción necesarios a una concentración dada de ácido clorhídrico. Así, por ejemplo a una temperatura de reacción de 40°C y a una proporción de ácido clorhídrico a N-nitroso-difenilamina = 3 : 1 en la mezcla de metanol/benceno, hasta tiempos de reac-
- 10.
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.

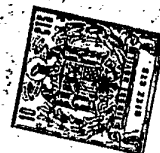


412438

ción de 30 minutos.

5. La elaboración procede por neutralización o por introducción de la solución de reacción en una lejía de álcali en exceso, dado que la 4-nitroso-difenilamina en su forma de oxima es soluble en álcalis. De la solución alcalina acuosa, eventualmente después de la separación del disolvente inmisible con agua, puede obtenerse la 4-nitroso-difenilamina por adición de ácido. La 4-nitroso-difenilamina tiene un punto de fusión nítido y es soluble en álcalis sin dejar ningún residuo. Una purificación ulterior del producto no es necesario.
10. La solución alcalina, sin embargo, puede ser sometida también directamente a una reducción a la 4-aminodifenilamina según procedimientos conocidos.
15. Si, al trabajarse en solución, han de evitarse elevadas concentraciones de ácido clorhídrico, debe trabajarse con una elevada concentración de N-nitroso-difenilamina y efectuarse la transposición solamente en parte.
20. La recuperación de la parte no transpuesta del material de partida, necesaria debido a la reducción de la cantidad reaccionada, es conseguida de tal manera que, realizada la transposición, se agrega una solución acuosa de lejía de álcali y se transfiere el material de partida no transpuesto a un disolvente inmisible con agua, que puede ser también un alcohol inmisible con agua. Convenientemente se agrega de antemano un disolvente correspondiente. Como disolventes inmiscibles con agua, se emplean los ya mencionados hidrocarburos aromáticos eventualmente sustituidos, así como los hidrocarburos clorados. Alcoholes inmiscibles con agua son alcoholes con 4 a 6 átomos de carbono, tales como por
- 25.
- 30.

412438



ejemplo, butanol, isobutanol o hexanol.

5. En estos disolventes queda disuelta la N-nitroso-difenilamina no transpuesta, mientras que la 4-nitroso-difenilamina en forma de oxima soluble en lejía de álcalis puede ser extraída como sal alcalina. La 4-nitroso-difenilamina libre puede ser obtenida directamente por neutralización de las soluciones alcalinas. Pero la solución de sal alcalina puede ser también reducida a 4-amina-difenilamina según procedimientos conocidos.

10. La fase orgánica que contiene todavía la parte no transpuesta de N-nitroso-difenilamina, puede ser enriquecida con la cantidad de difenilamina necesaria para restablecer la concentración original y se la puede hacer reaccionar con las cantidades, calculadas sobre difenilamina, de ácido sulfúrico diluido y de una solución acuosa alcalina de nitrito.

15. Así, según procedimientos conocidos, la difenilamina puede ser sometida casi cuantitativamente a la nitrosación. De esta manera se obtiene una solución con una concentración original de material de partida que puede volver a aplicarse a la transposición con una solución alcohólica de ácido clorhídrico. La fase acuosa es separada y desechada.

20.

25. Este tipo de la realización de procedimiento se ofrece especialmente para un modo operativo continuo. A este objeto, las etapas individuales arriba indicadas son conectadas en serie y las soluciones son conducidas en un ciclo; (Los números indicados se refiere a la Figura 2). Nitrosación de difenilamina a N-nitroso-difenilamina según procedimientos conocidos de dos fases (7), separación de fases (16), transposición de la fase orgánica con solución alcohólica

30. de ácido clorhídrico en una cantidad reaccionada determina-

412438



5. da, por elección de los parámetros de ensayo, tales como por ejemplo temperatura de reacción, tiempo de permanencia y cantidad de ácido clorhídrico (2), alcalinización de la solución con lejía acuosa de sosa (3), separación de fases (5) y devolución de la fase orgánica a la nitrosación (7), donde por adición de la cantidad de difenilamina (6) fijada por la cantidad reaccionada se restablece por nitrosación la concentración de partida.

10. Los números de referencia 1, 4, 6, 8 y 9 indican los recipientes de provisión para solución alcohólica de ácido clorhídrico (1), solución acuosa de álcali (4), difenilamina (6), solución alcalina de nitrito (8) y ácido sulfúrico diluido (9). Los números 11 y 12 se refieren a la descarga de 4-nitroso-difenilamina (11) y de aguas residuales (12).

15. Para la explicación del procedimiento, la Figura 2 representa en una vista esquemática una planta para el trabajo continuado. Los números que aparecen en la figura, indican:

20. 1) depósito para la solución alcohólica de ácido clorhídrico
- 2) aparato de transposición
- 3) recipiente mezclador
- 4) depósito para la solución acuosa de álcali
- 5) separador de fases
- 6) depósito para difenilamina
25. 7) aparato de nitrosación
- 8) depósito para la solución alcalina de nitrito
- 9) depósito para ácido sulfúrico diluido
- 10) separador de fases
- 11) solución alcalina de 4-nitroso-difenilamina
30. 12) aguas residuales.

412438



Naturalmente, el procedimiento según la invención no está limitado a la ilustración descripta.

5. La transposición procede a temperaturas entre 0° y 65°, preferiblemente entre 15° y 55°C. A causa del elevado calor de reacción, debe lograrse una buena descarga de calor, tal como es garantizada en una caldera bien refrigerable, en una caldera en cascada, en un tubo de reacción, o en una planta de circulación. En el modo operativo tanto discontinuo, como continuo, se mezcla la N-nitroso-difenilamina disuelta en un disolvente orgánico inmiscible con agua con una solución alcohólica de ácido clorhídrico (en forma continua) de tal modo que el tiempo (medio) de permanencia en el aparato es de hasta 4 horas, preferiblemente de hasta 2 horas, siendo el contenido del ácido clorhídrico en solución alcohólica, respectivamente en la mezcla de disolventes, de entre 1 % en peso y el valor determinado por la solubilidad del ácido clorhídrico en el alcohol, respectivamente la mezcla de disolventes. Por cada mol de N-nitroso-difenilamina se emplean hasta 20 moles, preferiblemente hasta 10 moles de ácido clorhídrico.
- 10.
- 15.
- 20.

- En la subsiguiente alcalinización (continua), se emplea por lo menos la cantidad de álcali que es necesaria para neutralizar el ácido clorhídrico y transformar la 4-nitroso-difenilamina en su sal alcalina. Un exceso de álcali no perjudica y hasta puede ser de ventaja para contrarrestar a una hidrólisis. La nitrosación (continua) de la difenilamina agregada puede ser efectuada a 15-17°C en el procedimiento de 2 fases por adición (continua) de ácido sulfúrico diluido y de una solución acuosa de nitrito de sodio.
- 25.

30. Si se realiza la reacción a una transposición par-



5. cial, la cantidad reaccionada puede variar dentro de límites amplios y es enteramente controlable por la elección de los parámetros de ensayo, tales como por ejemplo la temperatura de reacción, el tiempo de permanencia y la cantidad de ácido clorhídrico. Está entre 5 y 95 %, preferiblemente entre 10 y 90 %. Si se elige una cantidad reaccionada relativamente grande, uno puede decidirse a no devolver la cantidad restante sino de elaborarla a formar el material de partida. Si se la devuelve, la cantidad total reaccionada es dependiente del número de devoluciones. Así, 10. la misma asciende por ejemplo a un 90 % en el caso de una reacción al 47 % y de 10 devoluciones, a un 93 % en el caso de 15 devoluciones. El número de devoluciones es determinado tan solo por la cuota de enriquecimiento de los productos secundarios que merma la calidad. La descarga por 15. esclusa de estas impurezas puede ser efectuada tanto por una descarga total y renovación de la solución gastada a determinados intervalos de tiempo, como también por extracción y renovación continuada de un determinado porcentaje de la solución. La solución gastada puede ser entregada a 20. la recuperación del disolvente y a la elaboración de N-nitroso-difenilamina no reaccionada.

25. La calidad de la 4-nitroso-difenilamina formada es excelente, de modo que la solución alcalina puede ser entregada directamente a la etapa de reducción o por neutralización puede ser elaborada a 4-nitroso-difenilamina. Después de la reducción a 4-aminodifenilamina según procedimientos generalmente conocidos, puede recuperarse también el alcohol aplicado.

30. La ventaja del procedimiento según la invención

412438



5. reside, por un lado, en que se evita la descomposición espontánea, gracias a lo cual la transposición se desarrolla con seguridad también a gran escala. Por otro lado, el procedimiento se presta excelentemente bien para la aplicación al trabajo en forma continuada que al mismo tiempo implica una mejor descarga del calor. No en último término, se ofrece la ventaja de poder realizar todo el proceso, sin aislamiento de etapas intermedias, siempre en un medio líquido.
10. La 4-nitroso-difenilamina es un importante producto intermedio para la producción de agentes protectores contra envejecimiento para caucho natural y/o sintético, los cuales pueden ser obtenidos después de la reducción a 4-aminodifenilamina y subsiguiente alquilación, según respectivos procedimientos conocidos.
15. La transposición según el invento se explicará ahora en base a unos ejemplos. En el ejemplo de la realización continuada, todas las indicaciones cuantitativas se refieren a cantidades de paso por hora.
- Ejemplo 1
20. En un recipiente de reacción provisto de un dispositivo agitador, de un termómetro interior y de dos embudos cuenta-gotas, se hacen confluír las soluciones de 75 g de N-nitroso-difenilamina en 275 ml de benceno y de 60 g de ácido clorhídrico en 230 g de metanol, manteniéndose la temperatura a 40°C. A esta temperatura se sigue agitando durante
25. otros 10 minutos. Subsiguientemente se hace entrar la solución, bajo buena refrigeración en lejía de sosa acuosa en exceso, se agita bien y se separan las fases. Se ajusta la fase acuoso-alcalina al pH de 7 a 8, se recoge por succión el precipitado, se lo lava con agua y se lo seca. Se obtienen 70 g
- 30.

412438



de 4-nitroso-difenilamina (93 %) del P.f. = 143-144°C que se disuelve en acetona con color amarillo.

Ejemplo 2

5. Se procede como en el Ejemplo 1, pero en lugar de 60 g de HCl, se emplean 40 g y, en lugar de 10 minutos, se agita durante 30 minutos. Se obtienen 66,2 g (88 %) de 4-nitroso-difenilamina del P.f. = 144-145°C que se disuelve en acetona con color amarillo.

Ejemplo 3.

10. Se procede como en el Ejemplo 1, pero en lugar de 60 g de HCl, se emplean 80 g y se trabaja a 25°C y no a 40°C. Se obtienen 65,8 g (88 %) de 4-nitroso-difenilamina del P.f. = 144-145°C que se disuelve en acetona con color amarillo.

Ejemplo 4.

15. Se procede como en el Ejemplo 1, pero en lugar de 60 g de HCl, se emplean solamente 40 g. Se obtienen 64,9 g de 4-nitroso-difenilamina (86,5 %) del P.f. = 142-144°C que se disuelve en acetona con color amarillo.

20. La fase bencénica se mezcla con 55,5 g de difenilamina y se agrega una solución de 33 g de ácido sulfúrico concentrado en 200 ml de agua. Bajo buena agitación a 15-17°C se instila una solución de 24,8 g de NaNO_2 en 130 ml de agua debajo del nivel de la mezcla de reacción. Subsiguientemente se agita a la misma temperatura hasta que el tiempo total de reacción llegue a ser de 30 minutos. Después de la separación de fases, se aplica la fase bencénica como arriba a la transposición, se desecha la fase acuosa. Después de la elaboración se obtienen 62 g de 4-nitroso-difenilamina (83 %) del P.f. = 143-144°C, que se disuelve en acetona con color amarillo.

25.

30.

412438



Ejemplo 5.

5. Para iniciar, se prepara una solución de 550 g de N-nitroso-difenilamino en 935 ml de benceno. Mediante una bomba, se hace entrar la solución formada continuamente en un recipiente de paredes dobles de una capacidad de 410 ml. También en forma continuada, mediante una bomba, se agrega una solución de 134 g de ácido clorhídrico en 785 g de metanol = 1060 ml, que se prepara bajo buena refrigeración. Por conexión de un termóstato con el refrigerador del recipiente de reacción, se mantiene una temperatura de 40°C.
10. El tiempo medio de permanencia es de 10 minutos. La solución que abandona el recipiente de transposición, es alcalinizada en un recipiente mezclador de paredes dobles enfriado con agua de refrigeración, por adición dosificada continua de 200 g de NaOH en 1,5 litros de agua = 1,51 litros bajo agitación. El tiempo medio de permanencia es aquí de 30 minutos. Por un traspaso continuo efectuado mediante una bomba, la mezcla de fases entra subsiguientemente en un separador (1985 ml, tiempo medio de quedada 30 minutos), en el cual
15. las fases son separadas continuamente. La fase bencénica es enriquecida con 220 g de difenilamina y es entregada al aparato de nitrosación. En el recipiente de reacción provisto de refrigeración y de un agitador, por adición continuada dosificada de 850 ml de H₂SO₄ diluido (130 g de H₂SO₄ concentrado y 800 ml de agua) y de 850 ml de una solución de NaNO₂ (97 g de NaNO₂ y 820 ml de agua) a 15-17°C, se produce una
20. nitrosación de la difenilamina. El tiempo de permanencia es de 30 minutos. La mezcla de fases que abandona el equipo de nitrosación, es separada en un separador de trabajo continuo (tiempo medio de quedada 30 minutos). La fase bencénica
- 25.
- 30.



(1400 ml) vuelve continuamente al aparato de nitrosación.

La solución acuoso-alcalina normalmente pasa directamente a la subsiguiente hidrogenación para formar 4-aminodifenilamina. Para el contralor de la calidad y de cantidad reaccionada, se elaboró la cantidad formada en una hora, ajustándose a un pH de 7 a 8 mediante adición de HCl, recogiendo a succión la 4-nitroso-difenilamina precipitada, lavándosela con agua y secandola. Se obtuvieron 258 g (47 % de cantidad reaccionada) del P.f. = 142-143°C. La sustancia es totalmente soluble en NaOH al 35 % y da en acetona una solución clara amarilla.

NOTA

Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas, son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. También se hace constar que el invento corresponde a una Solicitud de Patente, presentada en Alemania, con fecha 9 de Marzo de 1.972, bajo el número P 22 11 341.3; acogándose por lo tanto a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor, siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España, sobre: PROCEDIMIENTO PARA LA PRODUCCION DE 4-NITROSO-DIFENILAMINA; caracterizándose por lo siguiente:

1.- Procedimiento para la producción de 4-nitrosodifenilamina, a partir de N-nitroso-difenilamina por transposición en solución alcohólica de ácido clorhídrico, eventualmente en mezcla con un disolvente orgánico inmiscible con agua, caracterizado porque se impide una separación del hidrocioruro

5.

10.

15.

20.

25.

30.

412438



de 4-nitroso-difenilamina por cristalización, por elegirse las condiciones de reacción de tal modo que el hidrocioruro de la 4-nitroso-difenilamina queda disuelto en el medio de reacción.

5. 2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque la reacción se efectúa a una elevada concentración de N-nitroso-difenilamina y elegirse las condiciones de reacción de tal modo que se transpone tan solo una parte de la N-nitroso-difenilamina.
10. 3.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque la reacción se efectúa en forma continuada.
- 4.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque se aplican hasta 20 moles de ácido clorhídrico por mol de N-nitroso-difenilamina.
15. 5.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque se trabaja a una temperatura de reacción entre 0° y 65°C.
- 6.- Procedimiento según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque se lleva a cabo con un tiempo de reacción de hasta 4 horas.
20. 7.- Procedimiento según la reivindicación 2, caracterizado porque la cantidad reaccionada está comprendida entre 5 y 95 %.
- 8.- Procedimiento según las reivindicaciones 1, 4, 5, y 6, caracterizado porque la reacción se efectúa a una elevada concentración del ácido clorhídrico.
25. 9.- Procedimiento para la producción de 4-nitroso-difenilamina, tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.
- 30.

412438



Esta Memoria consta de 17 hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, - 8 MAR. 1973

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT.-

J. GOMEZ ACEBO Y RUDEZ
p. p. Firmados L. Gasta Feroñades

412438

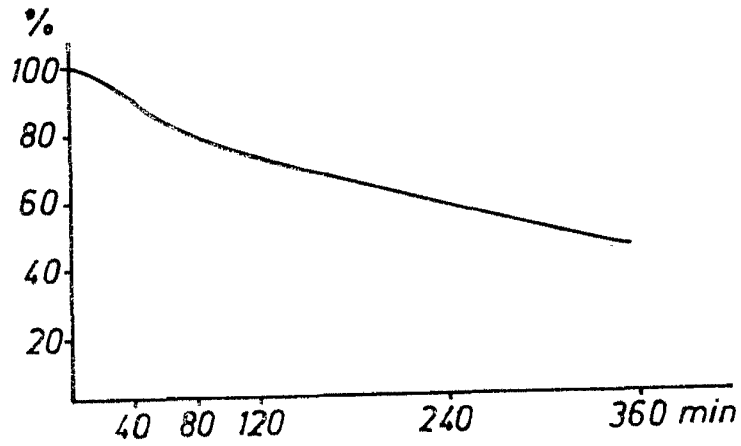


FIG. 1

ESC
VARI

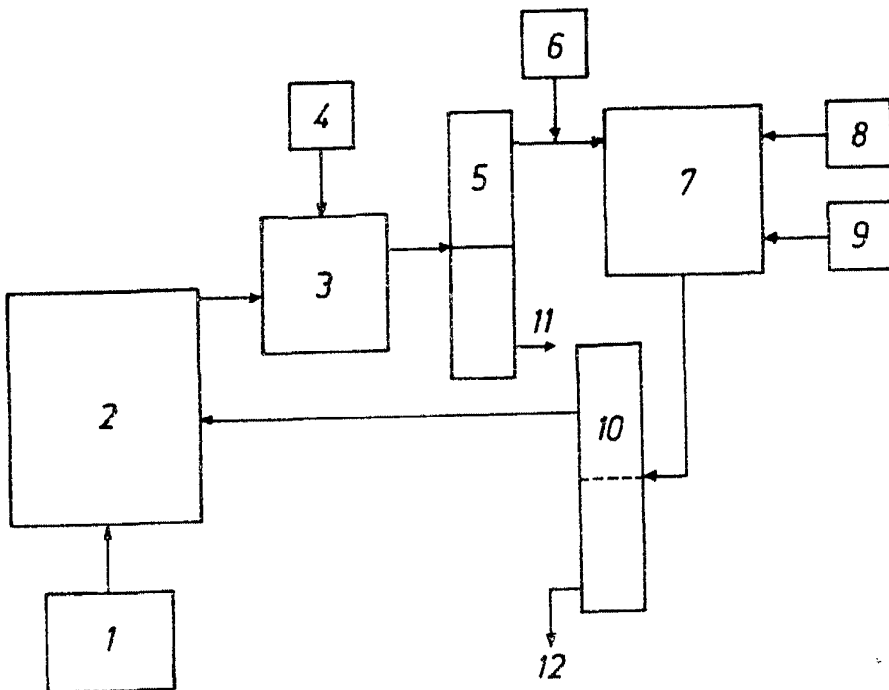


FIG. 2

Madrid

J. GOMEZ FERRAS Y BARRERO
p. p. Firmado: L. Gótsis Fernández