

CASE 1-8092/+

27



413025

Int. Cl. <i>CO7E</i>

P A T E N T E  
D E  
I N V E N C I O N

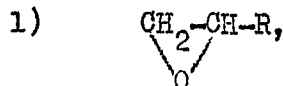
por "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE COMPUESTOS DE N-METILOL ALCOXILADO", a favor de la firma suiza CIBA-GEIGY AG. residente en BASILEA (Suiza).

= . =

MEMORIA DESCRIPTIVA

El objeto de la invención es un procedimiento para la preparación de compuestos de N-metilol alcoxilados, caracterizado porque se hace reaccionar a una temperatura de 10 a 160°C y una presión de 1 a 20 atmósferas

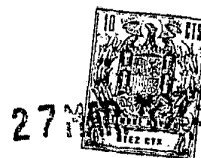
5. a) un compuesto de nitrógeno orgánico N-metilolado con  
b) un óxido de alquileo de la fórmula



en la que

10. R significa fenilo, alquilo con de 1 a 3 áto -

413025



mos de carbono, un radical  $\text{CH}_2\text{-OH-O}$   
o de preferencia hidrógeno, O

en presencia de

c) por lo menos un alcoholato metálico de la fórmula



en la que

Me significa un metal de transición n-valente de los grupos IV, V o VI del sistema periódico,

10. X significa fenilo, bencilo, cicloalquilo con 12 átomos de carbono a lo sumo, en especial de 5 a 12, sobre todo de 8 a 12 átomos de carbono, halogenalquilo con de 1 a 4 átomos de carbono o de preferencia alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono,

15. Q significa halógeno o alcoxilo con de 1 a 4 átomos de carbono,

r es de 1 a n y

n significa 4, 5 ó 6,

y eventualmente

20. d) por lo menos un hidróxido de metal alcalino o un alcoholato de metal alcalino de un alcohol con de 1 a 4 átomos de carbono.

25. El componente (a) está constituido en general de productos de adición de formaldehído a compuestos de nitrógeno metilolables, como por ejemplo compuestos de urea o tiourea, 1,3,5-aminotriacinas o amidas de ácido carboxílico.

Compuestos de urea y de tiourea apropiados son por ejemplo la urea, la tiourea, las ureas substituídas

413025

27 MAR



como alquilureas y arilureas, alquilenureas y alquilendiureas, etilenurea, propilenurea, dihidroxi etilenurea, hidroxipropilenurea, y acetilendiurea, además diciandiamida, diciandiamidina, uronas y hexahidropirimidonas.

5. En calidad de 1,3,5-aminotriacinas se citan, por ejemplo: melamina y melaminas N-sustituídas, como N-butilmelamina, N-trihalometilmelaminas, triazonas, ammelina, guanaminas, por ejemplo benzoguanaminas, acetoguanaminas o también diguanaminas.

10. En general los productos lo más altamente metilolados posible proporcionan productos especialmente valiosos. Asimismo se pueden utilizar éteres parciales de tales compuestos de metilol, con por ejemplo alcoholes con de 1 a 22 átomos de carbono, como metanol, etanol n-propanol, isopropanol, n-butanol o alcohol octadecílico.

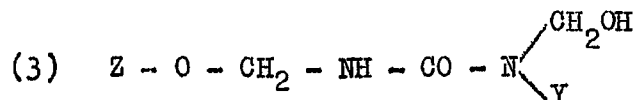
15. Las amidas de ácido carboxílico n-metiloladas están constituidas por ejemplo de amidas de ácidos carboxílicos aromáticos y alifáticos, como ácidos benzoicos eventualmente sustituidos con alquilo inferior, alcoxilo inferior, hidroxilo o halógeno o de preferencia de ácidos carboxílicos alifáticos saturados o insaturados. Compuestos especialmente apropiados de este tipo son las amidas de ácido carboxílico alifáticas N-metiloladas con 22 átomos de carbono a lo sumo, sobre todo amidas de ácido alquilmonocarboxílico o alquilmnocarboxílico N-metiloladas con 25. de 3 a 22 átomos de carbono, de preferencia de 10 a 18 átomos de carbono. Aquí se citan como ejemplos las amidas n mono- o di-N-metiloladas de por ejemplo ácido esteárico, ácido palmítico, ácido láurico, ácido hidroabietínico,



ácido oleico, ácido linoleico, ácido linolénico, ácido caprílico, ácido butírico, ácido acrílico y ácido metacrílico.

5. En el procedimiento según la invención se utilizan ventajosamente en calidad del componente (a) 1,3,5-aminotriacinas N-metiloladas, ureas o amidas de ácido carboxílico alifático con a lo sumo 22 átomos de carbono. Entre estos componentes son de gran interés práctico las N-metilolmelaminas y las N-metilolureas.

10. Se han mostrado en especial apropiados los compuestos de la fórmula



en la que

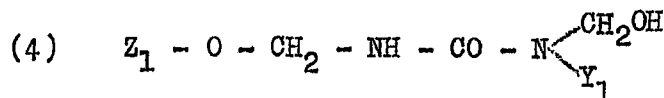
15. Y significa alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono o de preferencia hidrógeno o metilol y
- Z significa alquilo con de 1 a 22 átomos de carbono, alquenoilo con de 3 a 22 átomos de carbono, un radical de monoalquilenglicol o polialquilenglicol con 2 o 3 átomos de carbono por unidad alquilénica y con hasta 100 grupos de alcoxilo en la cadena, cicloalquilo con de 5 a 14, de preferencia de 8 a 12 átomos de carbono en el anillo, fenilo o bencilo,
20. o N-metilolmelaminas eterificadas parcialmente con de 2 a 6 grupos de metilol, por ejemplo de 1 a 5 grupos de metilol.

El radical Z se deriva por ejemplo de n-butanol, alcohol laurílico, alcohol estearílico, alcohol oleí-



lico, alcohol behenílico, ricinol, alcohol cetílico, ciclohexanol, ciclododecanol, p-nonilciclohexanol, alcohol hidroabietínico, alcohol bencílico o fenol.

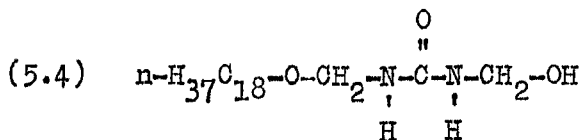
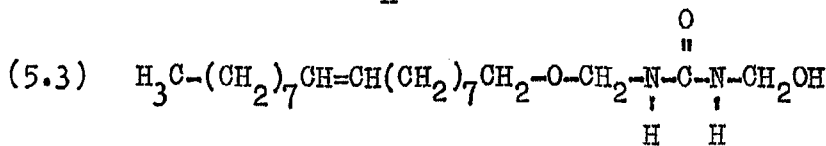
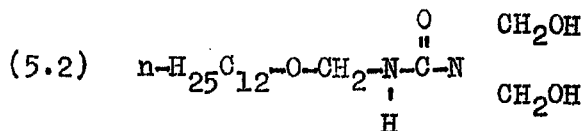
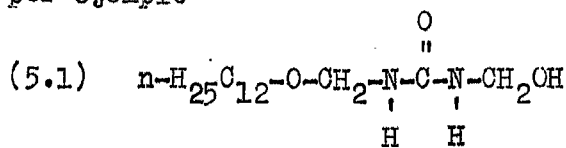
Entre los compuestos de la fórmula (3) son en especial apropiados sobre todo los de la fórmula

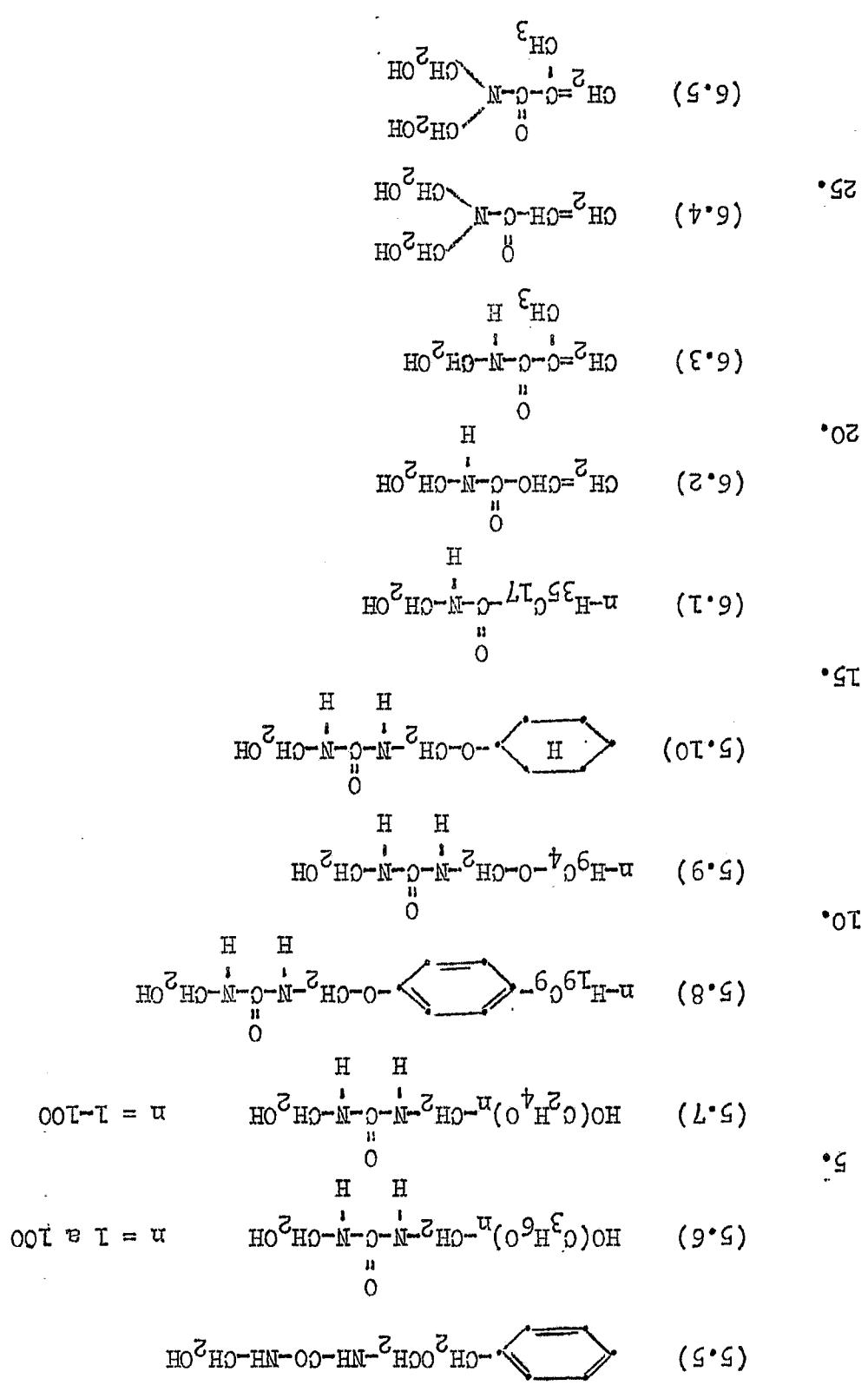


en la que

10.  $Y_1$  significa hidrógeno o metilol y  $Z_1$  representa alquilo o alquenilo con, en cada caso, de 4 a 18 de preferencia de 10 a 18 átomos de carbono, bencilo, un radical de monoetilenglicol o polietilenglicol con de 1 a 25 radicales de etoxilo en la cadena
15. o un radical de monopropilenglicol o polipropilenglicol con de 1 a 25 radicales de propoxilo en la cadena.

Representantes típicos de los componentes (a) apropiados para el procedimiento según la invención son por ejemplo

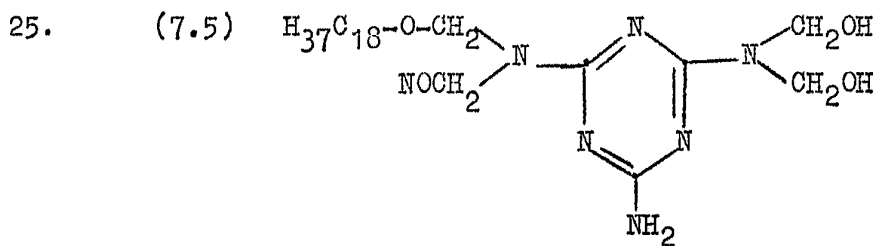
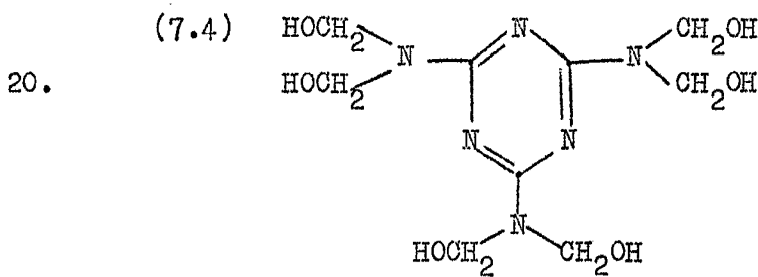
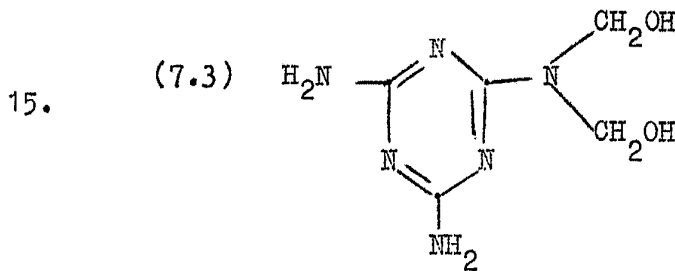
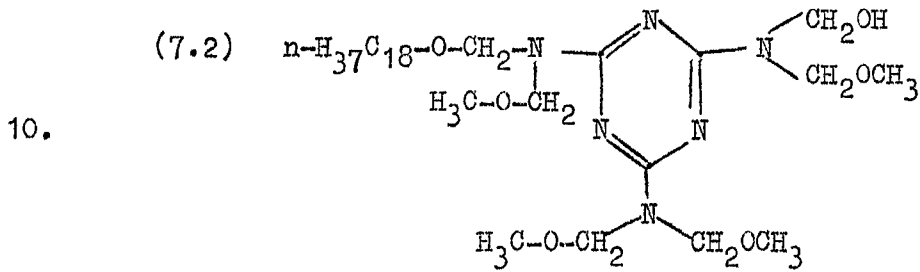
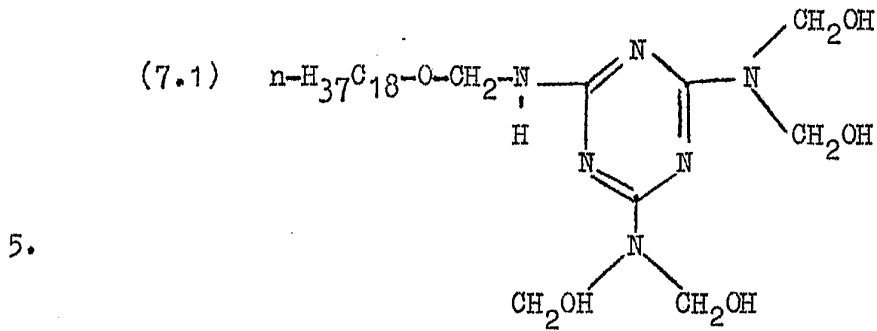




413025

413025

27 MAR 1952



413025

27M



El componente (b) está constituido por ejemplo de óxido de etileno, óxido de propileno, óxido de estireno o éster diglicídico. Es ventajoso el óxido de propileno y sobre todo el óxido de etileno.

5. El componente (c) está constituido en general de alcoholatos de metales de transición en los grupos IV, V o VI de los períodos 4,5 ó 6 del sistema periódico según "Lange's Handbook of Chemistry" 10 edición 1967, página 60 y 61. A estos metales de transición también pertenecen ele-

10. mentos de los grupos intermedios a los grupos a ó.b citados, titanio, circonio, hafnio, vanadio, niobio, tántalo, cromo, molibdeno y wolframio. Convenientemente, el procedimiento se realiza en presencia de alcoholatos metálicos de la fórmula



en la que

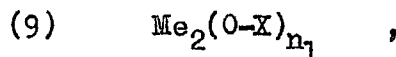
$Me_1$  significa niobio<sup>V</sup>, tántalo<sup>V</sup>, wolframio<sup>VI</sup>, molibdeno<sup>VII</sup>, o hafnio<sup>IV</sup> y

$n$  significa 4,5 o 6, que corresponde a la valencia del metal y

20.

$X$  tiene la significación indicada.

Los alcoholatos metálicos ventajosos corresponden a la fórmula



25.

en la que

$Me_2$  significa niobio<sup>V</sup>, tántalo<sup>V</sup> o wolframio<sup>VI</sup> y

$n_1$  significa 5 ó 6 y

$X$  tiene la significación indicada, en especial alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono.

413025

27 MAR



- Entre estos alcoholatos metálicos son en especial activos los alcoholatos de niobio y de tántalo con de 1 a 4 átomos de carbono, por ejemplo etilato y tercibutilato de tántalo y de niobio. El radical -O-X en las fórmulas (2),
5. (8) y (9) está constituido de preferencia por un radical de alcohol eventualmente clorado con hasta 4 átomos de carbono, como por ejemplo metanol, etanol, beta-cloroetanol, isopropanol, n-propanol, n-butanol, secubutanol o tercibutanol, un cicloalcohol con convenientemente de 5 a 12 o de preferen
10. cia de 8 a 12 átomos de carbono en el anillo como ciclododecanol o un radical de fenol o alcohol bencílico. En calidad de halógeno, Q significa por ejemplo bromo o de preferencia cloro. En calidad de alcoxilo, Q es en general diferente de OX y puede ser por ejemplo metoxilo, etoxilo, propoxilo
15. iso-propoxilo, n-butoxilo o de preferencia tercibutoxilo, r tiene de preferencia la misma significación de n, de forma que son ventajosos los alcoholatos metálicos de la fórmula  $Me(OX)_n$ . El procedimiento según la invención se realiza de preferencia en presencia de los componentes (d) adi
20. cionales facultativos. Se trata aquí por ejemplo de hidróxidos de metal alcalino, como hidróxido de litio, sodio, potasio, rubidio o cesio y los alcoholatos correspondientes de alcoholes con de 1 a 4 átomos de carbono, como se indican para los componentes (c).
25. En calidad de componente (d) se utiliza ventajosamente hidróxido de sodio o de potasio o un alcoholato de sodio o de potasio de un alcohol con de 1 a 4 átomos de carbono.



Calculado sobre el peso de la mezcla de reacción



se utilizan con ventaja de 0,05 a 5%, de preferencia de 0,1 a 2% y en especial de 0,4 a 1% de los catalizadores (c) o (c) y (d) conjuntamente.

- Si se utilizan conjuntamente los catalizadores (c) y (d), la proporción de peso de (c) a (d) asciende en general de 9:1 a 1:9, de preferencia de 4:1 a 1:4 o sobre todo de 7:3 a 3:7.

Representantes típicos del componente (c) son por ejemplo :

10. (10.1) Ta (OCH<sub>3</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.2) Ta (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.3) Ta (O-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.4) Ta (OC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.5) Ta (O-)<sub>5</sub>
15. (10.6) Nb (OCH<sub>3</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.7) Nb (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.8) Nb (O-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>)<sub>5</sub>  
 (10.9) Nb (OC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>5</sub>
20. (10.10) Nb (O-)<sub>5</sub>  
 (10.11) W (OCH<sub>3</sub>)<sub>6</sub>  
 (10.12) W (OC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>6</sub>  
 (10.13) Hf (O-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>)<sub>4</sub>  
 (10.14) Hf (O-C(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>4</sub>
25. (10.15) Mo (O-CH(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>)<sub>6</sub>  
 (10.16) Mo (O-C(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>6</sub>  
 (10.17) Ti (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>  
 (10.18) Ti (O-C(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>4</sub>

413025

27 MAR.



- (10.19) Zr  $(OC_2H_5)_4$
- (10.20) Zr  $(O-C(CH_3)_3)_4$
- (10.21) Ta  $(OCH_3)Cl_4$
- (10.22) Nb  $(OCH_3)_4Cl$
- 5. (10.23) Ti  $(OC_4H_9)_4$
- (10.24) Zr  $OCH_3(OC(CH_3)_3)_4$
- (10.25) Zr  $(OCH_3)Cl_3$

Representantes típicos del componente (d) son por ejemplo:

- 10. (11.1) Li OH
- (11.2) Na OH
- (11.3) K OH
- (11.4) Li  $OCH_3$
- (11.5) Na  $OCH_3$
- 15. (11.6) Na  $OC_2H_5$
- (11.7) Na  $OC(CH_3)_3$
- (11.8) K  $OCH_3$
- (11.9) K  $OC_2H_5$
- (11.10) K  $OC(CH_3)_3$

20. La temperatura de reacción asciende de preferencia de 30 a 120°C o en especial de 40 a 90°C.

La reacción puede realizarse a presión atmosférica o a sobrepresión de hasta 20 atmósferas. De preferencia la presión asciende de 1 a 15 atmósferas o en especial de 1 a 11 atmósferas. En general se trabaja en la llamada presión autógena, es decir la presión originada por sí misma por la mezcla de reacción a la temperatura indicada.

Según cada objeto de utilización de los productos de reacción se adicionan en general de 1 a 100, de preferen-



cia de 1 a 25 moles del componente (b) al componente (a).

- Eventualmente se puede realizar en forma conveniente la alcoxilación en presencia de un segundo alcóxido, que no interviene en la reacción verdadera. Por ejemplo puede hacerse reaccionar con óxido de etileno y utilizarse óxido de propileno o dioxano como medio de reacción o como agente de suspensión.
- 5.

- El procedimiento de acuerdo con la invención tiene la ventaja de que a condiciones suaves, es decir, a temperaturas relativamente bajas y con un catalizador prácticamente neutro puede adicionarse directamente óxidos de alquileo a un compuesto de nitrógeno N-metilolado. Son conocidos ya compuestos de N-metilol inestables en medio débilmente ácido y que en medio fuertemente alcalino forman policondensados o desdoblan formaldehído y agua.
- 10.
- 15.

- Las adiciones de por ejemplo óxido de etileno en un compuesto orgánico, que muestra un átomo de hidrógeno móvil, se realizan usualmente a temperaturas de 160 a 200°C. Sin embargo, en tales temperaturas elevadas la mayoría de compuestos de N-metilol no es más estable, es decir tiene lugar una descomposición de los grupos de metilol. Gracias al sistema de catalizadores utilizados según la invención (componente (c) solo o componentes (c) y (d) juntos) es actualmente posible realizar con éxito tales adiciones asimismo a temperaturas proporcionalmente bajas, es decir a temperaturas por debajo de 160°C, sin que se realice una descomposición de los grupos de metilol.
- 20.
- 25.

Los productos preparados según el procedimiento de acuerdo con la invención son reactivos gracias a sus gru-

4-13-025

27 MAR. 1951



- pos de metilol o bien de metilol esterificado y pueden utilizarse según cada substitución para objetos diferentes. En especial son apropiados en calidad de los llamados tensiuros reactivos, es decir como productos tensioactivos reactivos, que bajo condiciones determinadas, por ejemplo en reacción ácida o temperatura elevada, pueden transformarse en un estado insoluble irreversible. Pueden utilizarse, por ejemplo, para la preparación de microcápsulas. Además tales productos son apropiados como detergentes, aditivos de detergentes, emulgentes, dispersantes, aditivos hidrofobantes, agentes hidrofobantes, ablandantes hidrofilantes o carrier.
- 5.
- 10.

Tensiuros reactivos valiosos son en especial los compuestos dietéricos asimétricos, que muestran por lo menos un radical hidrófobo e hidrófilo.

- 15.
- 20.
- 25.
- La introducción de los grupos hidrófilos e hidrófobos puede efectuarse para ello en cualquier sucesión. Si se proviene de éteres asimétricos de la dimetilolurea por ejemplo, se eterifica hidrófobamente o hidrófilamente en primer lugar la monometilolurea. En el monoéter obtenido de la monometilolurea se adiciona luego una segunda molécula de formaldehído bajo formación del monoéter de dimetilurea. Este monoéter se eterifica de nuevo hidrófilamente o hidrófobamente, de modo que se origine un producto final, que contiene no sólo un grupo de éter hidrófilo sino también uno hidrófobo.

La introducción de los grupos hidrófilos, acuosolubles se realiza por ejemplo, de forma que el compuesto de monometilol respectivo se hace reaccionar en presencia de un catalizador por ejemplo con óxido de etileno, con lo que se

413025

27.11.33



- forma un éter de polietilenglicol. El grupo hidrófobo se introduce de una vez mediante eterificación directa del grupo de metilol en ambiente débilmente ácido con un compuesto de hidroxilo que contiene 4 o más átomos de carbono. Eventualmente puede eterificarse asimismo primero con un alcohol inferior y el superior difícilmente volátil introducirse mediante transesterificación. Otra posibilidad de introducir el grupo hidrófobo consiste en la reacción de los grupos de metilol libres con por ejemplo óxido de propileno. Ya que en la etapa precedente o subsiguiente se hace reaccionar con óxido de etileno, se obtiene por ejemplo dimetilurea, que se eterifica por una parte con óxido de polipropileno, y por otra parte con un polietilenglicol.
- 5.
- 10.

- Una forma de procedimiento ventajosa transcurre por ejemplo así: el compuesto de monometilol de laúrea que se prepara en forma conocida mediante adición de una molécula de formaldehído, se eterifica convenientemente primero con n-butanol y el éter del alcohol superior se prepara mediante transesterificación del éter n-butílico. Para ello es ventajoso el n-butanol, ya que con él se trabaja en fase homogénea y en la transesterificación el n-butanol puede destilar en vacío a temperatura no demasiado elevada. Por último es importante ya que en la eterificación que se realiza en ambiente débilmente ácido, por ejemplo acético se origina siempre algo de resina carbamídica insoluble. En la eterificación de monometilolurea con n-butanol es recomendable eterificar metilurea conteniendo por lo menos 5% de agua, y así mismo secar ésta no muy rigurosamente antes de la eterificación. La adición del óxido de etileno en los grupos de meti-
- 15.
- 20.
- 25.

413025

27 MAR

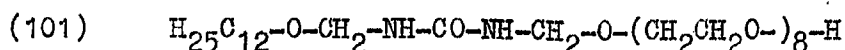


lol de la urea se efectúa según el procedimiento de acuerdo con la invención. La longitud de la cadena de éter de poliglicol juega un papel importante, ya que por su medio se influencia la solubilidad del tensiuro, en especial la solubilidad al agua.

5. Los ejemplos siguientes aclaran la invención sin por ello limitarla. En ellos los porcentajes son siempre tantos por cientos sobre el peso.

EJEMPLO 1

10. En un tubo de vidrio de 70 cc de capacidad se funden 100 mg de  $Ta(OC(CH_3)_3)_5$  con 6,6 g (que corresponden a 8 moles) de óxido de etileno y 5,4 g del compuesto de la fórmula (5.1) (1 mol). La mezcla se deja reaccionar a una presión de 10,5 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 90°C durante 16 horas, con lo que se adiciona el 99% del óxido de etileno. De esta forma se origina un producto final, que corresponde predominantemente a la fórmula



20. El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes:

	Banda ancha	alrededor de	3.320 $cm^{-1}$	fuerte
	Espaldón agudo	" "	2.960 "	medianamente fuerte
	Banda aguda	" "	2.920 "	débil
25.	" aguda	" "	2.840 "	fuerte
	Espaldón agudo	" "	1.710 "	medianamente fuerte
	Banda aguda	" "	1.630 "	mediana
	" "	" "	1.575 "	débil
	Espaldón ancho	" "	1.555 "	"

413025

27M

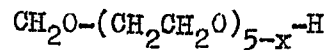
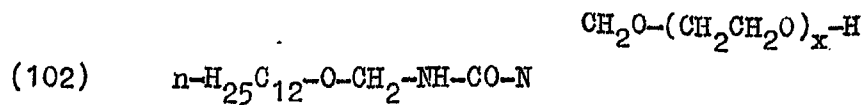


	Espaldón agudo	alrededor de	1.500	cm <sup>-1</sup>	débil
	Banda aguda	" "	1.460	"	medianamente débil
	Espaldón agudo	" "	1.450	"	" "
	" ancho	" "	1.395	"	débil
5.	" agudo	" "	1.380	"	"
	" "	" "	1.360	"	"
	" ancho	" "	1.300	"	"
	" "	" "	1.290	"	"
	Banda ancha	" "	1.250	"	medianamente débil
10.	" "	" "	1.075	"	" fuerte
	" "	" "	1.045	"	débil
	Espaldón ancho	" "	1.030	"	mediano
	Banda aguda	" "	920	"	débil
	" ancha	" "	880	"	"
15.	" "	" "	840	"	"
	" aguda	" "	800	"	"
	" "	" "	710	"	medianamente débil
	Espaldón agudo	" "	660	"	" "

EJEMPLO 2

20. Como se ha descrito en el ejemplo 1, fundense en un tubo de vidrio 100 mg de  $Ta(OC(CH_3)_3)_5$  con 11 g (que corresponden a 5 moles) de óxido de etileno y 14,4 g (1 mol) del compuesto de la fórmula (5.2) (con paraformaldehído metilolado posteriormente con éter dodecílico de monometilurea).
25. Esta mezcla de reacción se deja reaccionar durante 16 horas a una presión de 17,5 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 110°C, con lo que se adiciona el 98,7% del óxido de etileno. Con ello se obtiene un producto de reacción, que corresponde predominantemente a la fórmula

- 17 -  
413025



$x = 1 - 5$

5.

El espectro infrarrojo de este producto muestra

las bandas siguientes:

	Banda ancha	alrededor de	3.400 $\text{cm}^{-1}$	mediana
	Espaldón agudo	" "	2.940 "	medianamente fuerte
	Banda aguda	" "	2.910 "	débil
10.	Espaldón agudo	" "	2.860 "	"
	Banda aguda	" "	2.850 "	fuerte
	Espaldón ancho	" "	2.730 "	débil
	Banda ancha	" "	1.740 "	medianamente débil
	" "	" "	1.710 "	débil
15.	Espaldón ancho	" "	1.660 "	medianamente débil
	Banda aguda	" "	1.650 "	débil
	Espaldón agudo	" "	1.630 "	mediano
	" "	" "	1.555 "	débil
	" "	" "	1.535 "	"
20.	" "	" "	1.500 "	"
	" "	" "	1.490 "	"
	Banda ancha	" "	1.455 "	medianamente débil
	Espaldón ancho	" "	1.370 "	débil
	Banda aguda	" "	1.340 "	"
25.	" ancha	" "	1.285 "	"
	" "	" "	1.240 "	"
	" "	" "	1.110 "	mediana
	Espaldón ancho	" "	1.070 "	débil
	" "	" "	1.035 "	medianamente débil

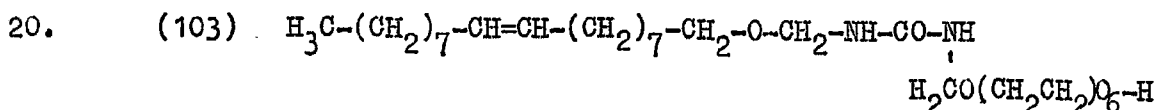


	Banda ancha	alrededor de	935 cm <sup>-1</sup>	débil
	" "	" "	880 "	"
	" "	" "	835 "	"
	Espaldón agudo	" "	800 "	"
5.	Banda ancha	" "	750 "	"
	Espaldón agudo	" "	710 "	"
	" "	" "	650 "	"

EJEMPLO 3

10. Como se ha descrito en el ejemplo 1, se funden en un tubo de vidrio 100 mg de mezcla de catalizador de NaOC<sub>2</sub>H<sub>5</sub> con Nb(OC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>5</sub> [mezclado en proporción 1:1] con 6,6 g de óxido de etileno [que corresponde a 6 moles] y 6,7 g (1 mol) del compuesto de la fórmula (5.3). Esta mezcla de reacción se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 5,2 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 60°C con lo que se adiciona el 98% del óxido de etileno utilizado.

15. Se obtiene un producto de reacción que corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes:

	Banda ancha	alrededor de	3400 cm <sup>-1</sup>	mediana
25.	Espaldón ancho	" "	2990 "	débil
	Banda aguda	" "	2910 "	fuerte
	Espaldón agudo	" "	2860 "	débil
	Banda aguda	" "	2840 "	fuerte
	Espaldón ancho	" "	2730 "	débil

413025

271



	Banda ancha	alrededor de	1760	cm <sup>-1</sup>	débil
	" "	" "	1705	" "	"
	" "	" "	1650	" "	medianamente débil
	Espaldón ancho	" "	1630	" "	" "
5.	" agudo	" "	1555	" "	débil
	" ancho	" "	1535	" "	"
	" agudo	" "	1500	" "	"
	Banda aguda	" "	1490	" "	"
	" ancha	" "	1455	" "	medianamente débil
10.	Espaldón agudo	" "	1370	" "	débil
	Banda aguda	" "	1340	" "	"
	" ancha	" "	1285	" "	"
	" "	" "	1240	" "	"
	" "	" "	1110	" "	fuerte
15.	Espaldón ancho	" "	1065	" "	débil
	" "	" "	1030	" "	medianamente débil
	Banda ancha	" "	940	" "	débil
	" aguda	" "	880	" "	"
	" ancha	" "	835	" "	"
20.	Espaldón ancho	" "	800	" "	"
	" agudo	" "	760	" "	"
	" "	" "	745	" "	"
	" ancho	" "	715	" "	"
	" agudo	" "	655	" "	"

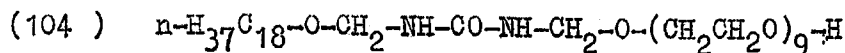
25.

EJEMPLO 4

Como se ha descrito en el ejemplo 1, se funden en un tubo de vidrio 100 mg de mezcla de catalizador de  $KOC_2H_5$  con  $Nb(OC(CH_3)_3)_5$  [en proporción 1:1] junto con 9,9 g (9 moles) de óxido de etileno y 10,15 g (1 mol de compuesto de la



fórmula (5.4). Esta mezcla se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 5,2 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 60°C, con lo que se adiciona el 99,4% del óxido de etileno. Se obtiene un producto de reacción, que corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes:

10.	Espaldón ancho	alrededor de	3420	cm <sup>-1</sup>	mediano
	Banda ancha	" "	3350	"	mediana
	Espaldón agudo	" "	2960	"	medianamente fuerte
	Banda aguda	" "	2920	"	débil
	" "	" "	2850	"	fuerte
15.	Espaldón ancho	" "	2740	"	débil
	" "	" "	1730	"	débil
	" agudo	" "	1700	"	"
	Banda ancha	" "	1650	"	mediana
	Espaldón ancho	" "	1625	"	débil
20.	" agudo	" "	1555	"	"
	" "	" "	1535	"	"
	Banda aguda	" "	1460	"	medianamente débil
	Espaldón ancho	" "	1375	"	débil
	Banda aguda	" "	1345	"	"
25.	Espaldón agudo	" "	1320	"	"
	Banda ancha	" "	1290	"	"
	" "	" "	1245	"	medianamente débil
	" "	" "	1110	"	" fuerte
	Espaldón ancho	" "	1070	"	débil

413025

27 MAR

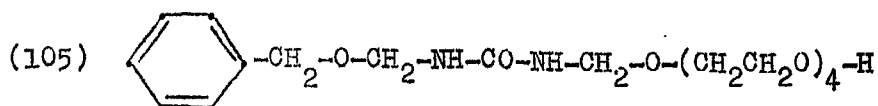


	Espaldón ancho	alrededor de	1035 cm <sup>-1</sup>	medianamente débil
	Banda ancha	"	940 "	débil
	" "	"	885 "	"
	Espaldón ancho	"	840 "	"
5.	Banda aguda	"	750 "	"
	" "	"	720 "	"
	Espaldón agudo	"	660 "	"

EJEMPLO 5

10. En un tubo de vidrio se funden 100 mg de mezcla de catalizador de  $Ta(OC(CH_3)_3)_5$  y  $Na_2O \cdot 2H_2O$  en proporción 1:1 con 8,8 g de óxido de etileno que corresponden a 4 moles y 5,4 g del compuesto de la fórmula (5.5). Esta mezcla se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 5.2 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico
15. termoequilibrado a 60°C, con lo que se adiciona el 97% del óxido de etileno.

Se obtiene un producto de reacción de la fórmula



20. El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes :

	Espaldón ancho	alrededor de	3420 cm <sup>-1</sup>	mediano
	Banda ancha	"	3340 "	mediana
	" "	"	2920 "	medianamente fuerte
25.	Banda aguda	"	2870 "	" "
	Espaldón ancho	"	2740 "	débil
	" "	"	1740 "	"
	Banda aguda	"	1705 "	"
	Espaldón ancho	"	1650 "	medianamente débil

413025



27 MAR. 1973

	Banda ancha	alrededor de	1635	cm <sup>-1</sup>	medianamente débil
	Espaldón agudo	"	1560	"	débil
	Banda aguda	"	1540	"	"
	Espaldón agudo	"	1510	"	"
5.	Espaldón agudo	"	1500	"	"
	Banda ancha	"	1455	"	"
	Espaldón ancho	"	1440	"	"
	" "	"	1380	"	"
	Banda aguda	"	1350	"	"
10.	Banda ancha	"	1295	"	"
	" "	"	1250	"	"
	Espaldón ancho	"	1220	"	"
	Banda ancha	"	1110	"	medianamente fuerte
	Espaldón ancho	"	1070	"	débil
15.	" "	"	1040	"	mediano
	Banda ancha	"	940	"	débil
	Banda aguda	"	885	"	"
	Espaldón ancho	"	805	"	"
	Banda ancha	"	745	"	"
20.	Banda aguda	"	700	"	"
	Espaldón agudo	"	660	"	"

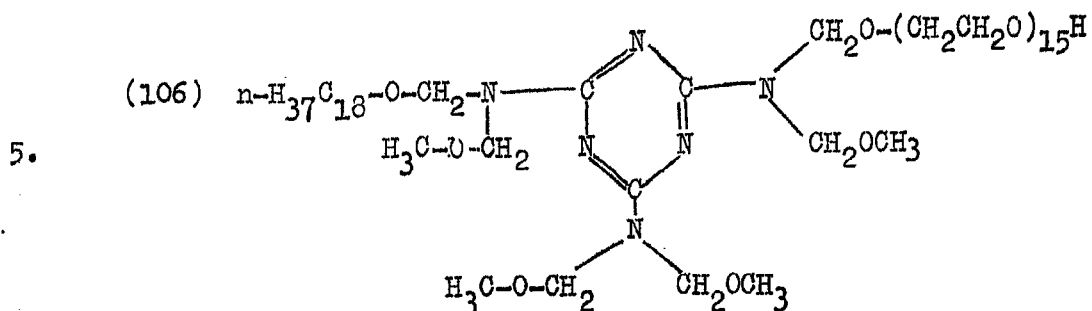
EJEMPLO 6

25. En un tubo de vidrio se funde 100 mg de  $Ta(OC_2H_5)_5$  con 13,2 g de óxido de etileno (que corresponden a 15 moles) y 10 g (1 mol) del compuesto de la fórmula (7:2) y se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 10,5 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 90°C, con lo que se adiciona el 100% del óxido de etileno.

-4313025



Se obtiene un producto de reacción que corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra

las bandas siguientes :

10.	Banda ancha	alrededor de	3430	cm <sup>-1</sup>	débil
	Espaldón agudo	"	2970	"	medianamente débil
	Banda ancha	"	2900	"	fuerte
	Espaldón ancho	"	2850	"	"
	" "	"	2740	"	débil
15.	Banda ancha	"	2460	"	"
	" "	"	1710	"	"
	Banda aguda	"	1540	"	fuerte
	Espaldón agudo	"	1470	"	mediano
	Espaldón ancho	"	1450	"	débil
20.	" "	"	1430	"	medianamente débil
	Banda aguda	"	1370	"	" "
	" "	"	1340	"	débil
	" "	"	1320	"	"
	" "	"	1290	"	"
25.	Espaldón ancho	"	1125	"	mediano
	Banda ancha	"	1085	"	medianamente débil
	Espaldón ancho	"	1030	"	mediano
	Banda aguda	"	940	"	débil
	" "	"	900	"	"

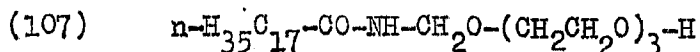
41-3025



Banda ancha alrededor de  $850 \text{ cm}^{-1}$  medianamente débil

EJEMPLO 7

- En un tubo de vidrio se funde 100 mg de mezcla de catalizador de NaOH y de  $\text{Nb}(\text{OC}(\text{CH}_3)_3)_5$  [en proporción 1:17] con 3,5 g de óxido de etileno (que corresponden a 3 moles) y 7,6 g (1 mol) del compuesto de la fórmula (6.1). Esta mezcla se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 5,2 atmósferas bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a  $60^\circ\text{C}$ , con lo que se adiciona el 75% del óxido de etileno. El producto de reacción corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes :

- |     |                |                                     |                    |
|-----|----------------|-------------------------------------|--------------------|
| 15. | Banda ancha    | alrededor de $3650 \text{ cm}^{-1}$ | débil              |
|     | Espaldón ancho | " 3560 "                            | " "                |
|     | Banda aguda    | " 3420 "                            | mediana            |
|     | Espaldón ancho | " 3350 "                            | mediano            |
|     | " "            | " 2970 "                            | medianamente débil |
| 20. | Banda ancha    | " 2910 "                            | fuerte             |
|     | Banda aguda    | " 2840 "                            | " "                |
|     | Espaldón ancho | " 2720 "                            | débil              |
|     | Banda ancha    | " 2460 "                            | " "                |
|     | Espaldón ancho | " 1710 "                            | " "                |
| 25. | Banda ancha    | " 1665 "                            | fuerte             |
|     | " "            | " 1585 "                            | débil              |
|     | Espaldón ancho | " 1530 "                            | " "                |
|     | Banda aguda    | " 1490 "                            | " "                |
|     | " "            | " 1450 "                            | medianamente débil |

413025

27 MAR 1973

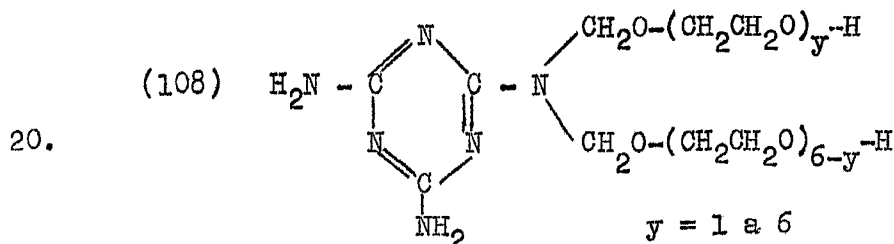


	Espaldón ancho	alrededor de 1410 cm <sup>-1</sup>	débil
	" "	" 1360 "	" "
	Banda aguda	" 1340 "	" "
	Espaldón ancho	" 1110 "	medianamente fuerte
5.	Banda ancha	" 1065 "	débil
	Espaldón ancho	" 1035 "	mediamente fuerte
	Banda ancha	" 925 "	débil
	Banda aguda	" 875 "	" "

EJEMPLO 8

10. En un tubo de vidrio se funden 100 mg de Ta(OC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>5</sub> con 13,2 g de óxido de etileno (que corresponden a 6 moles) y 9,3 g (1 mol) del compuesto de la fórmula (7.3). Esta mezcla de reacción se lleva a reacción durante 16 ho -

15. un baño térmico termoequilibrado a 60°C, con lo que se adicionan el 100% del óxido de etileno. Se obtiene un producto de reacción que corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes :

25.	Espaldón ancho	alrededor de 3400 cm <sup>-1</sup>	medianamente fuerte
	" "	" 3350 "	" "
	Espaldón agudo	" 2940 "	" "
	Espaldón ancho	" 2910 "	débil
	Banda aguda	" 2860 "	fuerte

413025



	Espaldón ancho	alrededor de	2740 cm <sup>-1</sup>	débil
	" "	"	1730 "	"
	" "	"	1630 "	mediano
	" "	"	1570 "	medianamente débil
5.	Banda ancha	"	1550 "	débil
	" "	"	1500 "	"
	" "	"	1455 "	medianamente débil
	Banda aguda	"	1345 "	" "
	Banda ancha	"	1320 "	débil
10.	" "	"	1290 "	"
	Banda aguda	"	1240 "	medianamente débil
	Banda ancha	"	1100 "	" fuerte
	Espaldón ancho	"	1070 "	débil
	" "	"	1035 "	mediano
15.	Banda ancha	"	940 "	medianamente débil
	Banda aguda	"	880 "	débil
	Banda ancha	"	840 "	"
	Banda aguda	"	810 "	medianamente débil
	Espaldón ancho	"	740 "	débil
20.	Espaldón agudo	"	655 "	medianamente débil

#### EJEMPLO 9

25. En un tubo de vidrio se funde 100 mg de  $Ta(OC_2H_5)_5$  con 11 g de óxido de etileno (que corresponden a 5 moles) y una mezcla de 7,5 g (1 mol) del compuesto de la fórmula (7,4) en 7,2 g de óxido de propileno (como agente de suspensión fácilmente eliminable ulteriormente). Esta mezcla se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 10,5 atmósferas bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 90°C. Tras la eliminación del óxido de propile-

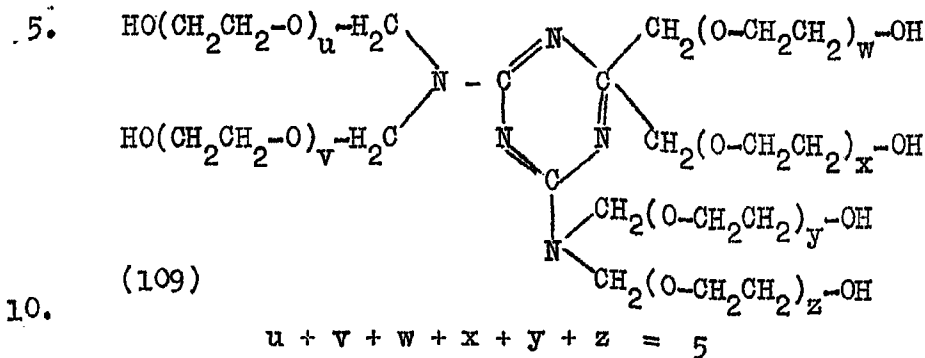
413025

27 MAR



no, que no ha participado en la reacción, puede determinarse que se ha adicionado el 100% del óxido de etileno.

Con ello se obtiene un producto de reacción, que corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes :

	Banda	alrededor de	$\text{cm}^{-1}$	
	Banda ancha		3650	débil
15.	Espaldón agudo	"	3580	mediano
	Banda ancha	"	3480	medianamente fuerte
	Espaldón agudo	"	2980	mediano
	Banda aguda	"	2920	mediana
	Banda aguda	"	2860	medianamente fuerte
20.	Espaldón agudo	"	2800	débil
	" "	"	2780	medianamente débil
	Banda ancha	"	2460	" "
	Espaldón ancho	"	1785	débil
	" "	"	1745	"
25.	Espaldón agudo	"	1720	"
	Banda ancha	"	1660	fuerte
	Espaldón ancho	"	1620	débil
	Espaldón ancho	"	1580	medianamente débil
	Banda ancha	"	1545	" "

413025

27 MAR



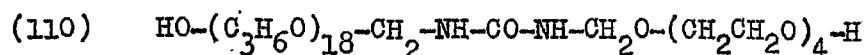
	Banda ancha	alrededor de 1480 cm <sup>-1</sup>	medianamente débil
	Espaldón ancho	" 1450 "	débil
	" "	" 1435 "	"
	Espaldón agudo	" 1400 "	"
5.	Banda aguda	" 1380 "	medianamente débil
	Espaldón ancho	" 1325 "	débil
	" "	" 1140 "	medianamente débil
	Banda aguda	" 1085 "	mediana
	Espaldón ancho	" 1040 "	mediano
10.	Banda aguda	" 965 "	débil
	Espaldón ancho	" 940 "	"
	Espaldón agudo	" 905 "	"
	Espaldón ancho	" 880 "	"
	Banda aguda	" 860 "	"

15.

EJEMPLO 10

En un tubo de vidrio se funden 100 mg de mezcla de catalizador de  $\text{KOC}_2\text{H}_5$  y  $\text{Nb}(\text{OC}(\text{CH}_3)_3)_5$  o  $\text{Ta}(\text{OC}(\text{CH}_3)_3)_5$  [en proporción 1:1] con 3,5 g de óxido de etileno (que corresponden a 4 moles) y 14 g del compuesto de la fórmula (5.6), en donde  $n = 18$ . Esta mezcla se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 5,2 atmósferas bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 60°C, con lo que se adiciona el 100% del óxido de etileno. Se obtiene un producto de reacción, que corresponde predominantemente a la fórmula

25.



El producto de partida de la fórmula (5.6) puede obtenerse por ejemplo de forma que en un tubo de vidrio se funden 100 mg de mezcla de catalizador de  $\text{KOC}_2\text{H}_5$  y potasio

29  
413025

27 MAR.



- metálico (en proporción 1:1) con una mezcla de 26 g de óxido de propileno (que corresponde a 18 moles) y 1,0 g de óxido de etileno (como iniciador) y 2,25 g de monometilolurea. Esta mezcla se lleva a reacción durante 16 horas a una presión de 5,3 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 90°C, con lo que se hace reaccionar al 100% del óxido de propileno. En lugar de la mezcla de catalizador anterior puede utilizarse asimismo una mezcla de  $\text{MoC}_2\text{H}_5$  y  $\text{Ta}(\text{OC}_2\text{H}_5)_5$  (en proporción 1:1). Este producto de reacción se somete luego a una metilolación posterior con paraformaldehído. El espectro infrarrojo del producto (110) muestra las bandas siguientes :

	Banda ancha	alrededor de	$3360 \text{ cm}^{-1}$	medianamente fuerte
	Espaldón agudo	"	2950	" mediano
15.	Espaldón ancho	"	2910	" débil
	Espaldón agudo	"	2860	" mediano
	Espaldón ancho	"	2720	" débil
	Espaldón agudo	"	1730	" medianamente débil
	Espaldón ancho	"	1715	" débil
20.	Espaldón agudo	"	1650	" "
	Banda aguda	"	1590	" medianamente débil
	Banda ancha	"	1450	" " "
	Espaldón ancho	"	1400	débil
	Banda aguda	"	1370	"
25.	Espaldón ancho	"	1355	"
	" "	"	1275	"
	Banda ancha	"	1235	"
	Espaldón ancho	"	1160	medianamente débil
	Banda ancha	"	1110	mediana

413025

27193



	Espaldón ancho	alrededor de	1075 cm <sup>-1</sup>	débil
	Banda ancha	"	1035 "	"
	Banda aguda	"	980 "	medianamente débil
	Espaldón ancho	"	930 "	" "
5.	Banda aguda	"	880 "	débil
	Banda ancha	"	830 "	"
	Espaldón agudo	"	660 "	medianamente débil

EJEMPLO 11

10. a) En un tubo de vidrio se funden 100 mg de mezcla de catalizador de  $KOC(CH_3)_3$  y  $Ta(OC_2H_5)_5$  [en proporción 1:1] con 13,2 g (que corresponden a 6 moles) de óxido de etileno y 4,5 g (1 mol) de monometilolurea. Esta mezcla se lleva a reacción durante 2 horas a una presión de 1 a 2 atmósferas y bajo sacudimiento en un primer baño térmico mantenido a 15. temperatura ambiente (de 20 a 25°C). Seguidamente el baño térmico se termoestabiliza a 60°C y la reacción continúa durante 16 horas a 5,2 atmósferas, con lo que se adiciona el 88% del óxido de etileno.

20. b) El producto de reacción descrito bajo a) se somete a una metilolación posterior con paraformaldehído y a continuación en este grupo de metilol introducido posteriormente se adiciona óxido de propileno como sigue:

25. En un tubo de vidrio se funde 100 mg de mezcla de catalizador de  $(KOC_2H_5)$  y  $Ta(OC(CH_3)_3)_5$  [en proporción molar 1:1] con 8,7 g (que corresponden a 6 moles) de óxido de propileno y 9,6 g del producto descrito bajo a) de la fórmula (5.7), en donde  $n = 6$ . Esta mezcla se lleva a reacción bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado según el programa siguiente :

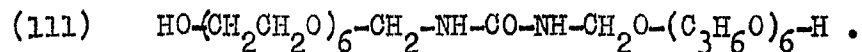
-31-  
413025

27 MAR



2 horas a 25°C y 0,7 atmósferas,  
4 horas a 60°C y 2,5 atmósferas y  
16 horas a 110°C y 7,9 atmósferas,  
con lo que se adiciona el 100% del óxido de propileno.

5. Se obtiene predominantemente un producto de reacción de la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes :

10.	Banda ancha	alrededor de	3430	cm <sup>-1</sup>	mediana
	Banda aguda	"	2960	"	medianamente fuerte
	Espaldón agudo	"	2910	"	débil
	Banda aguda	"	2860	"	fuerte
	Banda ancha	"	1730	"	débil
15.	Espaldón ancho	"	1705	"	"
	Banda ancha	"	1645	"	"
	Espaldón ancho	"	1500	"	"
	Banda ancha	"	1445	"	medianamente débil
	Banda aguda	"	1365	"	débil
20.	" "	"	1340	"	"
	" "	"	1315	"	"
	Espaldón ancho	"	1280	"	"
	Banda ancha	"	1250	"	"
	" "	"	1100	"	fuerte
25.	" "	"	1030	"	medianamente débil
	Espaldón ancho	"	990	"	débil
	Banda ancha	"	945	"	medianamente débil
	" "	"	835	"	débil
	Espaldón ancho	"	740	"	"

3025

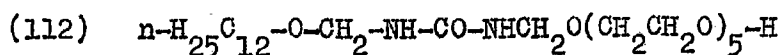
27



Espaldón agudo alrededor de 655 cm<sup>-1</sup> medianamente débil

EJEMPLO 12

En un tubo de vidrio se funden 100 mg de W(OOC(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)<sub>6</sub> con 6,6 g (0,15 moles) de óxido de etileno y 8,6 g (0,03 moles) del compuesto de la fórmula (5.1). La mezcla se hace reaccionar durante 16 horas a una presión de 4.27 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoequilibrado a 60°C, con lo que se adiciona el 99% del óxido de etileno. Se obtiene un producto final, que corresponde predominantemente a la fórmula



El espectro infrarrojo de este producto muestra las bandas siguientes :

Espaldón ancho	alrededor de	3400 cm <sup>-1</sup>	medianamente fuerte
Banda ancha	" "	3330 "	" "
Espaldón agudo	"	2950 "	" "
Banda aguda	"	2910 "	débil
" "	"	2850 "	fuerte
Espaldón ancho	"	2740 "	débil
" "	"	1725 "	"
Banda ancha	"	1635 "	medianamente fuerte
" "	"	1530 "	débil
" "	"	1490 "	"
" "	"	1450 "	"
Espaldón ancho	"	1435 "	"
Banda aguda	"	1365 "	"
" "	"	1340 "	"
Espaldón ancho	"	1280 "	"
" "	"	1240 "	"

33  
413025

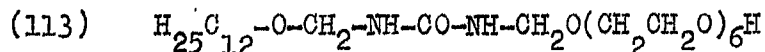
27 MAR



	Espaldón ancho	alrededor de	1170 cm <sup>-1</sup>	débil
	" "	"	1110 "	"
	" "	"	1060 "	"
	" "	"	1030 "	mediano
5.	Banda ancha	"	935 "	débil
	Banda aguda	"	880 "	"
	Banda ancha	"	835 "	"
	Espaldón ancho	"	800 "	"
	Banda ancha	"	765 "	"
10.	" "	"	745 "	"
	Banda aguda	"	710 "	"
	Espaldón ancho	"	660 "	"

EJEMPLO 13




15. En un tubo de vidrio de 70 cc de capacidad se funden 100 mg de Ta(On-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>)<sub>5</sub> con 7,92 g (que corresponde a 6 moles) de óxido de etileno y 8,64 g del compuesto de la fórmula (5.1). La mezcla se deja reaccionar durante 16 horas a una presión de 10,5 atmósferas y bajo sacudimiento en un baño térmico termoestabilizado a 90°C, con lo que se adiciona el 95,2 % del óxido de etileno. Se obtiene un producto final claro altamente viscoso, que corresponde predominantemente a la fórmula



25. Si se utiliza en este ejemplo en lugar de 100 mg de Ta(On-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>)<sub>5</sub>, la misma dosis de uno de los catalizadores siguientes, se obtiene el mismo producto final con los correspondientes rendimientos siguientes :

413025



Ejemplo	Catalizador	Rendimiento en %
	Ta(O-  ) <sub>5</sub>	97
5.	Ta(On-C <sub>5</sub> H <sub>11</sub> ) <sub>5</sub>	95,2
	Ta(OC(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> )Cl <sub>4</sub>	97,6
	Ta(O-Ciclododecano) <sub>5</sub>	98,1
10.	Nb(On-C <sub>9</sub> H <sub>19</sub> ) <sub>5</sub>	95,2
	Nb(O-  ) <sub>5</sub>	96,5
	Nb(O-  ) <sub>5</sub>	92,8
15.	Nb(O-ciclododecano) <sub>5</sub>	95,2
	Nb(OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> Cl	97,6
	Nb(OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> Cl <sub>4</sub>	97,0
20.	Nb(O-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ) <sub>5</sub>	95,8
	W(OC <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ) <sub>6</sub>	81,0
	Zr(On-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>4</sub>	99,0
	Zr(OC <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	95,2
25.	Zr(OCH <sub>3</sub> )Cl <sub>3</sub>	96,4
	Zr(OC <sub>2</sub> H <sub>4</sub> Cl) <sub>4</sub>	97,6
	Ti(On-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> ) <sub>4</sub>	97,0

413023

27

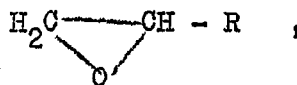


REIVINDICACIONES

Descrito el objeto del presente invento se declaran nuevas y de propia invención las siguientes reivindicaciones con prioridad de la solicitud de patentes suizas números 4632/72 del 28 de marzo de 1972, y 2747/73 del 26 de Febrero de 1973.

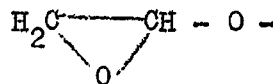
10. 1.- Procedimiento para la preparación de compuestos de N-metilol alcoxlado, caracterizado porque se hace reaccionar a una temperatura de 10 a 160°C y una presión de 1 a 20 atmósferas,

- a) un compuesto de nitrógeno orgánico N-metilolado con
- b) un óxido de alquileo de la fórmula



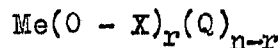
15. en la que

R significa hidrógeno, alquilo con de 1 a 3 átomos de carbono, fenilo o un radical



20. en presencia de

- c) por lo menos un alcoholato metálico de la fórmula



en la que

25. Me significa un metal de transición n-valente de los grupos IV, V ó VI del sistema periódico,

X significa alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono, halogenoalquilo con de 1 a 4 átomos de carbono, fenilo, bencilo o cicloalquilo con 12 átomos de carbono en el anillo a lo sumo,



- 36-25

27 MAR 1971



Q significa halógeno o alcoxilo con de 1 a 4 átomos de carbono,

r significa de 1 a m y

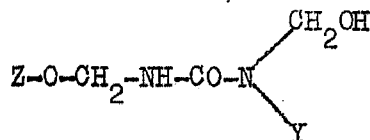
n significa 4, 5 ó 6,

5. y eventualmente

d) por lo menos un hidróxido de metal alcalino o un alcoholato de metal alcalino de un alcohol con de 1 a 4 átomos de carbono.

10. 2.- Procedimiento, según la reivindicación 1, caracterizado porque en calidad de componentes (a) se utiliza 1,3,5-aminotriacinas N-metiloladas, ureas o amidas de ácido carboxílico alifático con a lo sumo 22 átomos de carbono.

15. 3.- Procedimiento, según la reivindicación 2, caracterizado porque en calidad de componente (a) se utiliza un compuesto de la fórmula



20. en la que

Y significa hidrógeno, alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono o metilol y

25. Z significa alquilo con de 1 a 22 átomos de carbono, alqueno con de 3 a 22 átomos de carbono, un radical de monoalquilenglicol o polialquilenglicol con 2 ó 3 átomos de carbono por unidad de alqueno y con hasta 100 grupos de alcoxilo en la cadena, cicloalquilo con 5 a 14 átomos de carbono en el anillo, fenilo o bencilo,

413025<sup>37</sup>

27 MAR.

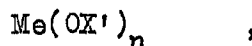


o una N-metilolmelamina con de 2 a 6 grupos de metilol, eventualmente parcialmente eterificados.

5. 4.- Procedimiento, según las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porque en calidad de componente (b) se utiliza óxido de etileno, óxido de propileno, éter diglicidílico u óxido de estireno.

5.- Procedimiento, según la reivindicación 4, caracterizado porque en calidad de componente (b) se utiliza óxido de etileno.

10. 6.- Procedimiento, según las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado porque la reacción se realiza en presencia de por lo menos un alcoholato metálico de la fórmula



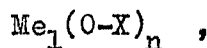
en la que

15. Me y n tienen la significación indicada en la reivindicación 1 y

X' significa alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono, fenilo, bencilo o cicloalquilo con 12 átomos de carbono en el anillo a lo sumo.

20.

7.- Procedimiento, según la reivindicación 1, caracterizado porque la reacción se realiza en presencia de por lo menos un alcoholato metálico de la fórmula



25. en la que

Me<sub>1</sub> significa niobio<sup>V</sup>, tantalio<sup>V</sup>, volframo<sup>VI</sup>, molibdeno<sup>VI</sup> o hafnio<sup>IV</sup> y

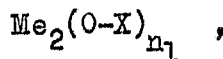
n significa 4, 5 ó 6, que corresponde a la valencia del metal, y

A handwritten mark consisting of a stylized, circular symbol with a diagonal line through it, possibly a signature or initials.



X tiene la significación indicada en la reivindicación 1.

5. 8.- Procedimiento, según la reivindicación 7, caracterizado porque la reacción se realiza en presencia de por lo menos un alcoholato metálico de la fórmula



en la que

Me<sub>2</sub> significa niobio<sup>V</sup>, tantalio<sup>V</sup> o wolframio<sup>VI</sup> y

10. n<sub>1</sub> significa 5 ó 6, y

X significa alquilo con de 1 a 4 átomos de carbono.

15. 9.- Procedimiento, según las reivindicaciones 1 a 8, caracterizado porque la reacción se realiza en presencia de hidróxido de sodio o de potasio o de un alcoholato de sodio o de potasio de un alcohol con de 1 a 4 átomos de carbono.

20. 10.- Procedimiento, según una de las reivindicaciones 1 a 9, caracterizado porque la reacción se realiza de 30 a 120°C.

11.- Procedimiento, según la reivindicación 10, caracterizado porque la reacción se realiza de 40 a 90°C.

25. 12.- Procedimiento, según las reivindicaciones 1 a 11, caracterizado porque la reacción se realiza a una presión de 1 a 11 atmósferas.

13.- Procedimiento, según las reivindicaciones 1 a 12, caracterizado porque calculado sobre el peso de la mezcla reaccional se utiliza conjuntamente de 0,05 a 5% de preferencia de 0,1 a 2%, de los catalizadores (c) y (d).

- 413025

27 MAR



14.- Procedimiento, según la reivindicación 13, caracterizado porque los catalizadores (c) y (d) se utilizan en una proporción de peso entre sí de 9:1 a 1:9, de preferencia de 4:1 a 1:4.

5.

15.- Procedimiento para la preparación de compuestos de N-metilol alcoxilado.

Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva que consta de 39 hojas foliadas y escritas a máquina por una sola cara.

10.

Madrid, a 27 de marzo de 1973.

p.a.

JAIME ISERN

p. R.

~~Firmado: JOSÉ F. NIETO~~

MA.