

6 MAR. 1974

P.- 56.568

Pos. A3GW31677

4 2 3 3 6 6

Int. Cl.:

C07C

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

a nombre de AKZO NV

entidad holandesa

establecida en Ijssellaan 82, Arnhem, Holanda

por: "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE N,N'-DICLORO-
AMIDA DE ACIDO TEREFTALICO Y DE N,N'-DICLORO-AMIDA
DE ACIDO ISOFTALICO"
(Clase Internacional C07c)

25-2-74

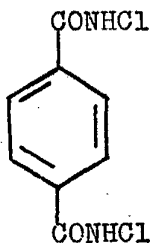
-1-

Es conocido halogenar amidas de ácidos carboxí-
licos alifáticos inferiores, en estado fundido o en solu-
ción acuosa, para formar las correspondientes N-halógenoa-
midas. Además es conocido preparar N-cloro-amidas de áci-
5 dos grasos de alto peso molecular, saturados e insatura-
dos, con más de 16 átomos de carbono, haciendo actuar
cloro sobre correspondientes amidas de ácidos grasos,
insolubles en agua, en forma finamente dividida en agua
(Patente alemana 749 976 y Patente alemana 878 491). Tam-
10 bién es ya conocido transformar amidas de ácidos carbo-
xílicos aromáticos por cloración o bromación en los co-
rrespondientes compuestos halogenados en el nitrógeno
(N-halogenados). Según R.L. Datta y T. Ghosh (Journ. Am.
Chem. Soc. 35 (1913), página 1044) se llega a preparar
15 N-cloro-benzamida con rendimiento cuantitativo, si se
introduce, en el curso de varias horas, la cantidad es-
tequiométrica de gas cloro en la solución de amida de
ácido benzoico. Si se emplea cloro en exceso, se forma
predominantemente N-dicloro-benzamida. Según el procedi-
20 miento de la memoria de la Patente alemana nº 616 381
se preparan N-cloro-amidas de ácidos carboxílicos, tanto
alifáticos como aromáticos suspendiendo una amida de
ácido carboxílico en un líquido que no la disuelve, por
ejemplo tetracloruro de carbono o diclorobenceno, e intro-
25 duciendo cloro en la suspensión, que convenientemente

deberá contener un agente fijador de ácido clorhídrico. Si se trasladan estos procedimientos conocidos para monoamidas a halogenamidas de ácidos dicarboxílicos alifáticos, alicíclicos y aralifáticos, se obtienen por lo general sólo rendimientos escasos. Según el procedimiento de la memoria de la Patente alemana nº 909 455, se pueden mejorar los rendimientos si la halogenación se lleva a cabo en presencia de un agente fijador de hidrácido halogenado, por ejemplo bicarbonato de sodio, si se emplea como disolvente agua, ácido acético glacial u otro ácido orgánico con adición de sales alcalinas o alcalino-térreas de estos ácidos, o si la amida de ácido carboxílico se mezcla en seco con el agente fijador de hidrácido halogenado y sobre la mezcla seca se hacen pasar vapores de halógeno. Por el contrario, hasta ahora no era conocido ningún procedimiento adecuado para la preparación de N, N'-dihalogeno-amidas de ácidos carboxílicos aromáticos. Únicamente en la memoria de la Patente de los Estados Unidos 3 105 848 se describe la preparación de N, N'-dicloro-amida de ácido isoftálico por cloración de amida de ácido isoftálico en nitrobenceno y en presencia de carbonato de sodio. Al perfeccionar este procedimiento conocido se obtiene N, N'-dicloro-amida de ácido isoftálico con un rendimiento de sólo 3,5% del teórico. La N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico, hasta ahora

desconocida, no se puede preparar de ninguna manera se-
gún este procedimiento. Tampoco los procedimientos cono-
cidos para la preparación de N-halógenomonosmidas condu-
cen al objetivo: en la cloración de amida de ácido te-
5 reftálico en presencia de hidróxido de sodio o de pota-
sio se obtienen sólo pequeñas cantidades de la deseada
N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico. Con empleo
de carbonato o de bicarbonato de sodio no se obtiene por
lo general ningún compuesto clorado en el nitrógeno, sino
10 únicamente mayores cantidades de ácido tereftálico formado
por saponificación. Tampoco la cloración en disolventes
orgánicos conduce al éxito deseado. Con empleo de tetra-
cloruro de carbono o de clorobenceno se recupera cuanti-
tativamente la amida de ácido tereftálico empleada, y en
15 el caso del empleo de ácido acético glacial, el rendi-
miento de N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico es
sólo 2,3% del teórico.

Objeto de la presente invención es el nuevo
compuesto N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico de la
fórmula



25

así como un procedimiento para la preparación de este compuesto y de la N, N'-dicloro-amida de ácido isoftálico por cloración de amida de ácido tereftálico o de amida de ácido isoftálico respectivamente. El procedimiento está caracterizado porque la cloración se lleva a cabo en una suspensión acuosa diluida de la amida de ácido tereftálico o de la amida de ácido isoftálico, habiéndose de ajustar la dilución de la mezcla de reacción de forma tal que, hasta el final de la reacción, el cloruro de hidrógeno formado en la cloración permanezca disuelto de forma casi completa en la mezcla de reacción.

Hay que considerar como sorprendente, el hecho de que el procedimiento de la cloración en un medio no acuoso y con empleo de un aceptador de cloruro de hidrógeno, que en el caso de las amidas de ácidos mono- y dicarboxílicos alifáticos, alicíclicos y aralifáticos conduce a resultados satisfactorios, en el caso de la amida de ácido tereftálico y de la amida de ácido isoftálico falle completamente, y que por el contrario el empleo del medio de reacción acuoso-ácido mineral, que en el caso de amidas de ácidos mono- y dicarboxílicos alifáticos, alicíclicos y aralifáticos así como en el caso de amidas de ácidos monocarboxílicos aromáticos, por ejemplo en el caso de benzamida, va unido a rendimientos bajos y/o a tiempos de reacción largos, tenga éxito en el caso de la

amida de ácido tereftálico y en el de la amida de ácido isoftálico. Esto es tanto más válido cuanto que la amida de ácido tereftálico y la amida de ácido isoftálico, al contrario que por ejemplo la benzamida, son completamente insolubles en medios acuosos y de ácidos minerales. También considerando el hecho de que fracasa completamente la preparación de la N, N'-dibromo-amida de ácido tereftálico, ya conocida, en condiciones iguales, es decir por bromación en ácido clorhídrico o bromhídrico acuoso diluido, tiene que designarse como extraordinariamente sorprendente el éxito del procedimiento según la invención.

Como medio acuoso y en ácido mineral se prestan por ejemplo, los ácidos clorhídrico, sulfúrico y fosfórico acuosos diluidos.

De preferencia, en el procedimiento según la invención, se parte de una suspensión acuosa neutra de la amida, disolviéndose en la mezcla de reacción el cloruro de hidrógeno formado como subproducto en la cloración y teniendo lugar por consiguiente la cloración en un medio acuoso y en ácido clorhídrico diluido. Preferentemente se partirá además de suspensiones diluidas acuosas y en ácido clorhídrico o acuosas y en ácido sulfúrico de las amidas.

El rendimiento y la velocidad de cloración de-

penden fuertemente de la concentración de ácido en la mezcla de reacción. Puesto que la concentración de ácido de la mezcla de reacción aumenta constantemente en el curso de la cloración, debido al cloruro de hidrógeno que queda libre, se hace más lenta la velocidad de cloración a medida que avanza la reacción. Si se parte de ácidos fuertemente concentrados, por ejemplo, de ácido sulfúrico al 50 por ciento en peso o de ácido clorhídrico al 25 por ciento en peso, se obtienen sólo rendimientos bajos. Por ejemplo, en ácido clorhídrico o en ácido sulfúrico concentrados no tiene lugar por lo general ninguna reacción. Cuando la concentración de ácido en la mezcla de reacción sobrepasa un valor determinado, se retrasa rápidamente la reacción. Esta concentración máxima de ácido, que no debe ser sobrepasada, es específica para cada uno de los ácidos minerales previamente dispuestos, y depende además de la temperatura de reacción y de la presión de reacción. Se ha encontrado que ésta se presenta cuando el cloruro de hidrógeno formado en el curso de la cloración ya no puede ser disuelto por completo en la mezcla de reacción, esto es cuando en las condiciones de la reacción se hubiera sobrepasado la concentración de saturación del cloruro de hidrógeno en la mezcla de reacción. Puesto que la cantidad de cloruro de hidrógeno que queda libre en la cloración puede calcularse a par-

tir de la cantidad de la amida empleada, es conveniente, ya en la elección del medio de reacción, regular en consecuencia la dilución de la mezcla de reacción. Evidentemente, la mezcla de reacción puede también ser diluída, en el curso de la reacción, con agua o con un ácido mineral diluído.

La cloración de la amida de ácido tereftálico y de la amida de ácido isoftálico transcurre exotérmicamente. El procedimiento según la invención se lleva a cabo a temperaturas desde 0 hasta 100°C. El empleo de temperaturas superiores es desventajoso por cuanto que, en estas condiciones, se forman por hidrólisis cantidades considerables de ácido tereftálico o de ácido isoftálico. Por motivos económicos, la cloración se lleva a cabo de preferencia a 0 hasta 60°C, pudiéndose eliminar el calor de la reacción por refrigeración con agua.

El procedimiento según la invención se puede llevar a cabo tanto a presión normal como también a presión elevada. Ciertamente, con presiones de cloro crecientes disminuyen los tiempos de reacción necesarios, pero por motivos económicos el intervalo de presiones de cloro preferidas está entre 1 y 20 atmósferas absolutas. De modo correspondiente a las condiciones elegidas de presión y de temperatura se emplea cloro líquido o cloro gaseoso.

Puesto que en el procedimiento según la inven-

ción la cloración tiene lugar en fase heterogénea, hay que procurar una buena homogeneización de la suspensión. La dilución de la mezcla de reacción deberá ser ajustada por lo menos de forma que la misma pueda ser agitada sin dificultad o pueda ser homogeneizada de otra forma. La dilución preferida de la mezcla de reacción es de aproximadamente 20 - 400 g de amida por litro de agua o de ácido mineral acuoso.

Manteniendo las condiciones mencionadas del procedimiento, la cloración se termina después de 2 a 60 minutos aproximadamente. La amida se transforma de modo prácticamente cuantitativo en la N,N'-dicloro-amida, sin que entretanto se produzca una disolución. La suspensión existente después de concluida la cloración contiene como sustancia sólida únicamente la N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico o la N,N'-dicloro-amida de ácido isoftálico. Los productos pueden ser separados en forma sencillísima por ejemplo por filtración o por centrifugación. Después del lavado, por ejemplo con agua fría, y del secado, por ejemplo a 70°C en vacío, se obtienen estos productos con la mayor pureza.

La N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico según la invención constituye una sustancia incolora microcristalina, que al efectuar calentamiento a 250°C se sinteriza débilmente con una ligera coloración gris, y a

partir de 300°C se sublima un poco. Es moderadamente soluble en disolventes orgánicos polares, por ejemplo, en dioxano, dimetil-acetamida, dimetil-formamida y hexametil-trisamida de ácido fosfórico. La N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico es estable de forma prácticamente ilimitada en recipientes oscuros. A temperatura ambiente constituye un agente oxidante suave. A causa de su sobresaliente estabilidad se puede emplear, por ejemplo, ventajosamente como sustitutivo del agente antiséptico cloramina T (N-cloro-p-toluensulfonamida de sodio), menos estable.

La N, N'-dicloro-amida de ácido isoftálico y la N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico constituyen además valiosos compuestos intermedios. Por reacción con aminas se pueden transformar en ureas sustituidas, que encuentran utilización como herbicidas y pesticidas.

Ejemplo 1

540 g (3,29 moles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 10 litros de agua. En la suspensión se introdujeron, durante 2 horas y con agitación intensa, 4 g de cloro por minuto. Por ligera refrigeración se mantuvo la temperatura de reacción a 25°C. La presión era de 1,0 atmósferas absolutas. Después de ello se filtró la mezcla de reacción, el residuo se lavó con 2 litros de agua fría

y se secó a 70°C en vacío. Se obtuvieron 755 g (98,4% del teórico) de N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico incolora.

§ Ejemplo 2

32 g (0,195 moles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 0,6 litros de ácido clorhídrico al 17 por ciento en peso, en un autoclave de vidrio. A 6 atmósferas absolutas, se introdujeron, con agitación y enfriamiento a 25°C, 33 g de cloro. Al cabo de 8 minutos se había establecido en el autoclave una presión constante, por consiguiente la reacción estaba terminada. La mezcla de reacción se sometió a tratamiento como en el ejemplo 1. El rendimiento de N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico pura fue de 44,2 g (97,2% del teórico).

Ejemplo 3

1.200 g (7,317 moles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 7 litros de ácido clorhídrico al 17 por ciento en peso. En la suspensión se introdujeron, a 25°C y en el curso de 30 minutos, 1.100 g de cloro de forma que la presión se mantuviera constante a 6 atmósferas absolutas. Después de ello se sometió a tratamiento la mezcla de reacción en la forma descrita en el ejemplo 1. El rendimiento fue de 1.690 g (99,1% del teórico) de N, N'-

dicloro-amida de ácido tereftálico.

Ejemplo 4

5 En una suspensión de 400 g (2,439 moles) de amida de ácido tereftálico en un litro de ácido clorhídrico al 17 por ciento en peso se introdujeron, a presión normal y 55°C, en el intervalo de 140 minutos, 360 g de cloro. El tratamiento de la mezcla de reacción se realiza como se ha descrito en el Ejemplo 1. El rendimiento de N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico fue de 522 g (92% del teórico).

10

Ejemplo 5

15 En una suspensión de 5 g (0,0305 moles) de amida de ácido tereftálico en 200 ml de ácido sulfúrico acuoso al 10 por ciento se introdujeron, con agitación a presión normal y a una temperatura de 25°C, durante dos horas, aproximadamente 0,1 g de cloro por minuto. La N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico se separó por filtración, se lavó con agua y se secó. El rendimiento fue de 6,94 g (97,7% del teórico).

20

Ejemplo 6

25 64 g (0,39 moles) de amida de ácido isoftálico se suspendieron en medio litro de ácido clorhídrico al 15 por cien-

to. Con agitación, a temperatura ambiente y presión normal, se introdujeron en la suspensión, en el intervalo de 3 horas, 90 g de cloro gaseoso. Después de ello se filtró la mezcla de reacción, el residuo se lavó con agua fría y se secó. Se obtuvieron 90 g (99,0% del teórico) de N, N'-dicloro-amida de ácido isoftálico de punto de fusión 73,5 - 75°C.

Ejemplo 7

10 16,4 g (0,10 moles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 500 ml de ácido clorhídrico al 17 por ciento en peso y se calentaron en un autoclave esmaltado a 34°C. A continuación, por medio de una cubeta de dosificación y con agitación intensa, se añadieron 22,8 g (0,32 moles) de cloro líquido. Mediante refrigeración con agua se mantuvo una temperatura de reacción de 35°C. La presión de reacción fue de 10 atmósferas absolutas.

15 Al cabo de 5 minutos se redujo rápidamente la presión de la suspensión de reacción, se retiró del autoclave, se filtró y se lavó con 200 ml de agua. El residuo se secó a 70°C en vacío. Resultaron 22,6 g (97% del teórico) de N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico.

Ejemplo 8

25 16,4 g (0,10 moles) de amida de ácido tereftálico se sus-

pendieron en 500 ml de ácido clorhídrico al 17 por ciento en peso y se calentaron rápidamente a 45°C en un autoclave esmaltado. Después, por medio de una cubeta de dosificación, con agitación y refrigeración por agua, se introdujeron 23 g (0,325 moles) de cloro líquido, subiendo la temperatura en un intervalo de 30 segundos a 55°C y la presión a 20 atmósferas absolutas. Después de 3 minutos se retiró la mezcla de reacción del autoclave y se filtró. El residuo se lavó con 200 ml de agua y se secó en vacío a 70°C. El rendimiento fue de 94% del teórico.

Las siguientes experiencias comparativas 9 a 13 muestran, que en el caso de empleo de los procedimientos de cloración usuales, adecuados para la preparación de N-cloro-amidas o N,N'-dicloro-amidas de ácidos carboxílicos alifáticos, alicíclicos, aralifáticos y aromáticos, se fracasa en la preparación de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico o de N,N'-dicloro-amida de ácido isoftálico.

Ejemplo 9

8,2 g (50 milimoles) de amida del ácido tereftálico se suspendieron en una solución de 8,7 g (103 milimoles) de bicarbonato de sodio en 450 ml de agua. Con agitación vigorosa, se introdujeron, en un intervalo de 30 minutos a 5°C, 7,1 g (100 milimoles) de cloro. Con ello se inició

un desprendimiento tumultuoso de dióxido de carbono. Después de terminada la reacción (valor del pH: 7,5) se filtró y a continuación el residuo se suspendió en lejía diluida de sosa a 2-5°C, se enfrió a -5°C y finalmente se filtró con empleo de una frita de vidrio. Como residuo quedaron 6,23 g (38 milimoles) de amida de ácido tereftálico que no había reaccionado, correspondiendo a un grado de transformación de 24% del teórico. A continuación el producto filtrado se introdujo gota a gota, a 0°C, en ácido acético, con lo que precipitó ácido tereftálico en forma de un precipitado blanco voluminoso. Se lavó con agua helada y se secó sobre P_2O_5 : 1,85 g (11 milimoles). No se obtuvo N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico.

15 Ejemplo 10

8,2 g (50 milimoles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 400 ml de agua y se mezclaron rápidamente, a 5°C, con una solución de hipoclorito de sodio preparada a partir de 26,5 g (250 milimoles) de carbonato de sodio en 500 ml de agua y 7,1 g (100 milimoles) de cloro. La mezcla de reacción se agitó vigorosamente durante 4 horas a 10°C. El valor del pH fue de 10. A continuación se separó por filtración de amida de ácido tereftálico que no había reaccionado: 5,69 g (34,7 milimoles). El grado de conversión de amida de ácido tereftálico fue por con-

siguiente de 30,6%. Del producto filtrado se separó el ácido tereftálico formado por saponificación, mediante precipitación con ácido acético en la forma descrita en el Ejemplo 9: 2,62 g (15,8 milimoles), correspondientes a 31,7% del teórico. Tampoco por esta forma de trabajo se obtuvo nada de N, N'-dicloro-amida de ácido tereftálico.

Ejemplo 11

8,2 g de amida de ácido tereftálico (50 milimoles) se suspendieron en 500 ml de agua bajo nitrógeno y se mezclaron lentamente, a 5°C, con una solución recién preparada a partir de 20,0 g de NaOH (500 milimoles), 400 ml de agua y 7,1 g de Cl₂ (100 milimoles). La mezcla de reacción se agitó entonces vigorosamente durante 4 horas a 10°C, a continuación se enfrió a -5°C y se filtró sobre una frita de vidrio. El residuo blanco, que se lavó dos veces con agua fría y se secó, consistía en amida de ácido tereftálico que no había reaccionado (4,8 g; 29,4 milimoles). Por consiguiente la conversión fue de 41,4% del teórico.

El filtrado se incorporó cuidadosamente, gota a gota en un intervalo de 15 minutos, en una solución de 50 ml de ácido acético glacial y 100 ml de agua a 0-7°C. Con ello se separó un precipitado voluminoso, caseoso,

que se separó por medio de una frita de vidrio, se lavó bien con agua helada y a continuación se secó sobre pentóxido de fósforo a temperatura ambiente. Este producto bruto, 4,90 g de un polvo amarillo claro, se digirió en 50 ml de cloroformo. Después de la filtración se obtuvieron como residuo 1,61 g (10,9 milimoles) de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico. Esto corresponde a un rendimiento de sólo 16,1% del teórico, con una selectividad de sólo 38,8%.

De la fase en cloroformo se separó por cristalización la bis-dicloro-amida de ácido tereftálico, hasta ahora desconocida, en forma de agujas amarillas. Rendimiento: 3,29 g (25,3% del teórico con 61,2% de selectividad). Esta sustancia posee, en comparación con la N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico, un efecto oxidante reforzado y se caracteriza por una buena solubilidad en disolventes orgánicos, en especial en hidrocarburos clorados.

Ejemplo 12

8,2 g (50 milimoles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 50 ml de agua y se mezclaron, a 0-5°C en el intervalo de 30 minutos, con agitación y en una atmósfera de nitrógeno, con una solución de 32,7 g de hidróxido de potasio al 86 por ciento (500 milimoles), 7,10 g

(100 milimoles) de cloro y 400 ml de agua. La mezcla de reacción se agitó durante 5 horas a la temperatura citada. Con ello se volvió mucho menos viscosa y se coloreó de pardo-amarillo. A continuación se filtró la suspensión y se sometió a tratamiento en la forma descrita en el Ejemplo 11. Se recuperaron 5,988 g de amida de ácido tereftálico; por consiguiente la conversión fue de 2,21 g (13,5 milimoles), correspondiendo esto a 27% del teórico.

Del producto filtrado se pudieron aislar, en forma análoga a la del Ejemplo 11, 3,3 g de bis-dicloroamida de ácido tereftálico (11 milimoles; 22% de rendimiento) y 5% del teórico de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico.

Ejemplo 13

41 g (0,25 moles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron, con 10,3 g (0,125 moles) de óxido de zinc tamizado, en 300 ml de agua a 2°C, se introdujeron, en el intervalo de hora y media, a 0-5°C, 71 g (1,0 mol) de cloro y a continuación se agitó durante 6 horas a 5°C. Después de la filtración, la N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico formada se separó de la amida de ácido tereftálico que no había reaccionado, con lejía de sosa 2N a 5°C y a continuación se precipitó en ácido acético y se sometió a tratamiento en forma análoga a la del Ejemplo 11.

Se recuperaron 35,2 g (0,214 moles) de amida de ácido tereftálico. El grado de conversión fue por consiguiente de sólo 11,7% del teórico. El rendimiento de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico fue de 0,757 g (0,0325 moles) = 7,7% del teórico. 4% de la amida de ácido tereftálico se saponificó para formar ácido tereftálico.

Los siguientes ejemplos comparativos 14 a 16 muestran que la cloración de la amida de ácido tereftálico en diferentes disolventes orgánicos no conduce de ninguna manera a la N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico o lo hace sólo con rendimientos muy bajos.

Ejemplo 14

En una suspensión de 41 g (0,25 moles) de amida de ácido tereftálico en 160 ml de ácido acético glacial se introdujeron, con agitación vigorosa y en un intervalo de aproximadamente 16 horas a 18-20°C, 213,0 g (3,0 moles) de cloro. A continuación se separó por filtración el residuo de amida de ácido tereftálico y de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico y se lavó con agua. La separación de estos dos compuestos se realizó con lejía diluída de sosa y por precipitación subsiguiente con ácido acético. Se recuperaron 39,9 g de amida de ácido tereftálico que no habia reaccionado. El rendimiento de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico fue de 1,35 g (58 milimoles), esto

corresponde a 2,3% del teórico.

Ejemplo 15

5 En una suspensión de 41 g (0,25 moles) de amida de ácido tereftálico en 500 ml de tetracloruro de carbono se introdujeron, con agitación vigorosa en un intervalo de 12 horas a 10°C, 265 g (3,74 moles) de cloro. La mezcla de reacción se sometió a tratamiento en la forma descrita en el Ejemplo 13. Se recuperó cuantitativamente la amida de ácido tereftálico, y no se pudo comprobar la formación de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico.

10

Ejemplo 16

15 En una suspensión de 41 g (0,25 moles) de amida de ácido tereftálico en 250 ml de clorobenceno se introdujeron, con agitación vigorosa en un intervalo de 3,5 horas a la temperatura de ebullición (132°C), 121 g de cloro. Con ello se sublimaron aproximadamente 5,4 g de cristales incoloros. Se identificaron como hexaclorobenceno, que se había formado por cloración del disolvente. La amida de ácido tereftálico empleada se recuperó cuantitativamente.

20

De los Ejemplos 17 y 18 se puede deducir que la N,N'-dibromo-amida de ácido tereftálico, conocida, no es obtenible de ninguna manera mediante el empleo de la forma de trabajo correspondiente al procedimiento según la invención.

25

Ejemplo 17

5 16,4 g (100 milimoles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 180 ml de ácido bromhídrico acuoso al 10 por ciento y se mezclaron gota a gota a 20°C, con 32 g de bromo (200 milimoles). A continuación la mezcla de reacción se agitó durante 24 horas y después se filtró. El residuo se lavó y se secó. Consistía en 16,2 g de la amida de ácido tereftálico empleada.

10 Ejemplo 18

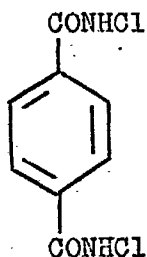
15 16,4 g (100 milimoles) de amida de ácido tereftálico se suspendieron en 180 ml de ácido clorhídrico acuoso al 10 por ciento y se mezclaron, a 20°C y gota a gota, con 32 g de bromo. Después de 5 horas se trató la carga de reacción como se describe en el Ejemplo 16. Se recuperó cuantitativamente la amida de ácido tereftálico.

20 Esta solicitud, que corresponde a la presentada en República Federal Alemana, el 19 de Marzo 1973, bajo el nº P 23 13 548.0, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

REIVINDICACIONES

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

1ª.- N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico



2ª.- Procedimiento para la preparación de N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico y de N,N'-dicloro-amida de ácido isoftálico por cloración de amida de ácido tereftálico o de amida de ácido isoftálico, respectivamente, caracterizado porque la cloración se lleva a cabo en una suspensión diluída acuosa y en ácido mineral, de la amida de ácido tereftálico o de la amida de ácido isoftálico, habiéndose de ajustar la dilución de la mezcla de reacción de forma que, hasta el final de la reacción, el cloruro de hidrógeno formado en la cloración permanezca disuelto de forma casi completa en la mezcla de reacción.

3ª.- Procedimiento según la reivindicación 2ª, caracterizado porque se parte de una suspensión acuosa neutra.

4ª.- Procedimiento según la reivindicación 2ª,
caracterizado porque se parte de una suspensión diluída
en ácido clorhídrico.

5 5ª.- Procedimiento según la reivindicación 2ª,
caracterizado porque se parte de una suspensión diluída
en ácido sulfúrico.

6ª.- Procedimiento según las reivindicaciones
2ª a 5ª, caracterizado porque la cloración se lleva a
cabo a temperaturas desde 0 hasta 100°C, de preferencia
10 desde 0 hasta 60°C.

7ª.- Procedimiento según las reivindicaciones
2ª a 6ª, caracterizado porque la reacción se lleva a cabo
a presiones desde 1 hasta 20 atmósferas absolutas.

8ª.- Procedimiento según las reivindicaciones
15 2ª a 7ª, caracterizado porque la dilución de la carga de
reacción es de aproximadamente 20 a 400 g/l de amida de
ácido tereftálico o de amida de ácido isoftálico.

9ª.- Procedimiento para la preparación de
20 N,N'-dicloro-amida de ácido tereftálico y de N,N'-diclo-
ro-amida de ácido isoftálico.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que an-
tecede y con los fines que se han especificado.

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

Madrid, 6 MAR. 1974

P.A.

Alfonso de Eizaburu
Por firma