



La presente invención se refiere a un procedimiento para la preparación de diamidas de ácidos dicarboxílicos aromáticos y cicloalifáticos, por amonólisis de di-ésteres oligómeros o polímeros de los correspondientes ácidos dicarboxílicos.

5 A partir de la memoria de patente británica 829 251 es conocido calentar ácidos benzenocarboxílicos o sus ésteres alcohólicos inferiores a temperaturas de 150 a 350°C, en un autoclave, con amoníaco anhidro. Según este procedimiento conocido, se pueden transformar, por ejemplo, ácido tereftálico, ácido  
10 isoftálico o éster dietílico de ácido tereftálico a 250-200°C y presiones de aproximadamente 160 atmósferas absolutas en diamida de ácido tereftálico o diamida de ácido isoftálico. Sin embargo, en este caso se obtiene una mezcla de reacción, que  
15 consta sólo de 80 a 92% de diamida. Junto a ella contiene además sales amónicas, monoamida, dinitrilo y ácido dicarboxílico que no ha reaccionado. Puesto que la transformación de tales  
mezclas de reacción es costosa, el procedimiento no es adecuado para la preparación de diamidas puras. Las mezclas de reacción obtenibles son transformadas en lugar de ello en nitrilos  
20 por calentamiento adicional a temperaturas de 350 a 500°C.

Según las especificaciones de la memoria de patente de los Estados Unidos 3 296 303 se puede mejorar este procedimiento si se utilizan los ésteres de etilén-glicol, de propilén-glicol o de dietilén-glicol del ácido dicarboxílico. Según otra  
25 forma de realización de este procedimiento conocido, se parte

del ácido dicarboxílico libre y se hace reaccionar a éste primeramente con etilén-glicol, propilén-glicol o dietilén-glicol en exceso para formar los correspondientes diésteres; la mezcla de reacción obtenida se somete a continuación a la amonólisis, sirviendo el glicol en exceso como medio de reacción.

5

A partir de la DT-DS 2 216 116 es conocido preparar diamida de ácido tereftálico por amonólisis de poliésteres del ácido tereftálico. Según este procedimiento, la amonólisis se lleva a cabo en fase líquida, a temperaturas de 70 a 125°C y presiones de amoníaco de 30 a 100 atmósferas absolutas o en fase gaseosa a temperaturas de 70 a 250°C y presiones de amoníaco de 10 a 50 atmósferas absolutas. En ambas formas del procedimiento se utiliza amoníaco en gran exceso, para conseguir la elevada presión parcial de amoníaco necesaria para una velocidad de reacción satisfactoria. Después de realizada la amonólisis, el amoníaco, en exceso es expulsado en forma gaseosa, condensado y conducido al circuito.

10

15

20

25

Según un procedimiento descrito en la DT-DS 2 216 028, se llega a diamidas de ácido tereftálico y de ácido isoftálico, sustituidas y no sustituidas, si los correspondientes ácidos dicarboxílicos se policondensan con un alcohol divalente o plurivalente o con un bisfenol, o con mezclas de los mismos, en presencia de un catalizador, los ésteres oligómeros o polímeros obtenidos en tal caso se liberan de poliol en exceso y del agua de reacción, y a continuación son tratados directamente

con amoníaco en ausencia de cualquier sustancia extraña al sistema o auxiliar. La amonólisis puede ser realizada del modo ya descrito al tratar de la OT-OS 2 216 116, como amonólisis en fase líquida o como amonólisis en fase gaseosa.

5 En el caso de la realización como amonólisis en fase líquida, el procedimiento es desventajoso toda vez que es necesario un gran exceso de amoníaco como disolvente o como agente favorecedor de la disolución de los poliésteres u oligoésteres. En el caso de la realización como amonólisis en fase

10 gaseosa, el procedimiento es desventajoso toda vez que son necesarios un mezclado a fondo intenso y tiempos de reacción relativamente largos, a causa de la mala transferencia de masas.

Sorprendentemente se ha encontrado ahora que la

15 amonólisis de oligoésteres y poliésteres aromáticos y cicloalifáticos, en condiciones determinadas, en alcoholes plurivalentes, conduce rápida y cuantitativamente a diamidas. Por consiguiente, es objeto de la presente invención un procedimiento para la preparación de diamidas de ácidos dicarboxílicos aromáticos y cicloalifáticos, por amonólisis de un oligo-

20 éster o poliéster del correspondiente ácido dicarboxílico con un alcohol plurivalente, que esté caracterizado porque la amonólisis se lleva a cabo en un alcohol plurivalente a temperaturas de 30 a 200°C y presiones parciales de amoníaco de

25 0,1 a 50 atmósferas absolutas.

En el procedimiento según la invención entran en consideración, como sustancias de partida, oligoésteres y poliésteres de los siguientes ácidos dicarboxílicos: ácido tereftálico, ácido metiltereftálico, ácido nitrotereftálico, ácido 2,5-dibromo-tereftálico, ácido 1,3-dibromo-tereftálico, ácido tetracloro-tereftálico, ácido tetrabromo-tereftálico, ácido tetraflúor-tereftálico, ácido 5-bromo-2-nitro-tereftálico, ácido 2 metoxi-tereftálico, ácido 2,5-dinitrilo-tereftálico, ácido fosfonato-tereftálico, ácido 2-metoximetil-tereftálico, ácido isoftálico, ácido 4-metil-isoftálico, ácido 2,4,6-trinitro-isoftálico, ácido 4,6-diflúor-isoftálico, ácido isoftal-4-sulfónico, ácido isoftal-5-sulfónico, los ácidos naftalen-dicarboxílicos isómeros, además los ácidos 4,4'-y 3,3'-difenildicarboxílicos isómeros, ácido difeniléter-dicarboxílico, ácido difeniltioéter-dicarboxílico, ácido difenilsulfon-dicarboxílico, ácido difenilmetano-dicarboxílico y ácido difeniletano-dicarboxílico, además ácido ciclohexandicarboxílico-1,4, ácido ciclohexandicarboxílico-1,3, así como los derivados sustituidos de estos ácidos carboxílicos con uno o varios grupos alcoholo, arilo, aralcoholo, alcoholarilo, nitro, ácido sulfónico, sulfonato, hidroxilo, alcoxi, ciano, amino, monoalcoholamino, monoarilamino, dialcoholamino, ácido fosfónico, fosfonato, ácido o carboxilato como sustituyentes. Ejemplos de alcoholes plurivalentes, a partir de los que son obtenidos los oligoésteres y poliésteres a utilizar, son etilenglicol,

dietilénglicol, 1,3-propanodiol, 1,4-butanodiol, 1,6-hexano-  
diol, 1,8-octanodiol, 1,10-decanodiol, 1,2-propanodiol, 2,2-di-  
metil-1,3-propanodiol, 2,2,4-trimetilhexanodiol, xilenodiol-  
1,4, 1,4-ciclohexanodiol, 1,3-ciclohexanodiol, ciclohexan-  
1,4-dimetanol y glicerina. Como sustancias de partida entran  
5 en consideración, además, oligoésteres y poliésteres de uno  
de los ácidos mencionados y de varios alcoholes plurivalentes,  
por consiguiente copolicondensados. Son adecuadas además mez-  
clas consistentes en diferentes oligómeros, diferentes políme-  
10 ros o de homopolicondensados o copolicondensados oligómeros y  
polímeros del mismo ácido dicarboxílico. De preferencia son  
utilizados oligocondensados y policondensados de ácido tereftá-  
lico, ácido isoftálico, ácido metil-tereftálico, ácido 2,6-naft-  
talendicarboxílico, ácido difenil-4,4'-dicarboxílico, ácido di-  
15 feniléter-4,4'-dicarboxílico, ácido difeniltioéter-4,4'-dicarbo-  
xílico, ácido difenilmetan-4,4'-dicarboxílico, ácido difenile-  
tan-4,4'-dicarboxílico, ácido difenilsulfon-4,4'-dicarboxílico  
y ácido ciclohexan-1,4-dicarboxílico con etilénglicol, butano-  
diol-1,4 o glicerina.  
20 Como medio de reacción son utilizados los alcoholes  
plurivalentes antes mencionados como componentes de los éste-  
res, por lo tanto etilénglicol, dietilénglicol, 1,3-propanodiol,  
1,4-butanodiol, 1,6-hexanodiol, 1,8-octanodiol, 1,10-decanodiol,  
1,2-propanodiol, 2,2-dimetil-1,3-propanodiol, 2,2,4-trimetil-  
25 hexanodiol, p-xilenodiol, 1,4-ciclohexanodiol, 1,3-ciclohexano-

diol, 1,4-ciclohexanodimetanol y glicerina. Pueden utilizarse también mezclas de estos alcoholes. Como medio de reacción se utiliza de preferencia el alcohol plurivalente que constituye el componente alcohólico del éster.

5 Según una forma preferida de realización del procedimiento, según la invención, se parte de un éster oligómero o polímero de etilén-glicol y del ácido dicarboxílico y se lleva a cabo la amonólisis en etilén-glicol.

10 Los poliésteres son utilizados, por ejemplo, como granulado, en forma de recortes o de fibras. Materiales de partida adecuados son también los desperdicios oligómeros y polímeros que resultan en la producción y en la hilatura de poliésteres, así como en el tratamiento químico y mecánico ulterior de poliésteres. Tales productos pueden contener, junto a catalizadores de transesterificación y de policondensación, también  
15 agentes antiestáticos, agentes estabilizantes, pigmentos y otras sustancias auxiliares, pero por regla general no es necesario separar catalizadores y sustancias auxiliares, puesto que no impiden la amonólisis o lo hacen en extensión no digna de men-  
20 ción.

También es posible utilizar, en lugar de los oligoésteres y poliésteres acabados, la mezcla de reacción que resulta en su preparación, que contiene diol en exceso. En este caso y al contrario que en el procedimiento de la DT-OS 2 216 028, el  
25 diol en exceso no es separado, sino que la mezcla de reacción es

sometida directamente a la amonólisis.

5 Como fue sorprendentemente comprobado, los alcoho-  
les plurivalentes influyen muy favorablemente sobre la amonó-  
lisis de oligoésteres y poliésteres, y muy especialmente en  
lo que respecta a la selectividad. La cantidad de disolvente  
a utilizar está determinada por la solubilidad del producto  
a amonolizar en las condiciones de reacción. En el caso de po-  
limeros oligómeros y de polimeros relativamente bien solubles,  
la cantidad de disolvente puede ser desificada de modo que al  
10 comienzo de la reacción se presenta una solución transparente.  
En el caso de sustancias de partida difícilmente solubles se  
utiliza tanta cantidad de disolvente como para que la mezcla  
de reacción permanezca suficientemente fluida poco viscosa  
hasta el término de la amonólisis, de modo que sea posible  
15 un mezclado a fondo suficiente. Las cantidades necesarias de  
disolvente están en el intervalo de 100 a 1000 por ciento en  
peso, referido al oligoéster o poliéster empleado. Las canti-  
dades preferidas de disolvente son de 200 a 500 por ciento  
en peso, referido al oligoéster o poliéster empleado.

20 Las temperaturas de reacción en el procedimiento  
según la invención pueden estar en el intervalo desde 25 hasta  
200°C. Son preferidas temperaturas de reacción de 50 a 160°C.  
Las presiones parciales de amoníaco están en el intervalo des-  
de 0,1 hasta 50 atmósferas absolutas. Por razones técnicas y  
25 económicas, el procedimiento según la invención se lleva a

cabo preferentemente a presiones parciales de amoníaco inferiores a 20 atmósferas absolutas.

5 La duración necesaria de la reacción depende del tipo del oligoéster o poliéster utilizado, de la presión parcial de amoníaco, así como de la temperatura de reacción, y en el caso de la amonólisis de una suspensión de oligoéster o de poliéster, depende también de un modo decisivo del espesor del material de partida, por consiguiente del tamaño de grano, del diámetro de los rebortes o del título de las fibras. Si la  
10 amonólisis se realiza en solución o con un material muy finamente dividido, ésta, en las condiciones preferidas del procedimiento, está terminada por regla general en menos de dos horas. En el caso de un material de partículas muy gruesas resultan tiempos de reacción más largos, por ejemplo en el caso de un  
15 poliéster con tamaño de grano de 5 mm, resulta una duración de la reacción de 5 a 6 horas.

El procedimiento según la invención puede ser llevado a cabo, por ejemplo, disolviendo o suspendiendo primero el oligoéster o el poliéster en el alcohol plurivalente, y después  
20 en las condiciones de reacción, introduciendo o haciendo pasar amoníaco gaseoso a través de la solución o suspensión, procurando simultáneamente un buen mezclado. También es posible incorporar la solución o la suspensión en un autoclave, llenar el espacio gaseoso del autoclave con la cantidad necesaria de amoníaco y mezclar intensamente el contenido del autoclave.  
25

En el caso del empleo de un material polímero o de partículas muy gruesas, se recomienda disolver primero al mismo en el alcohol plurivalente a una temperatura por encima de la temperatura de reacción prevista, y después dejar enfriar esta solución hasta la temperatura de reacción. De este modo el poliéster, en el caso de que no permanezca completamente disuelto, precipita en forma finamente desmenuzada y es por consiguiente más fácilmente accesible al ataque del amoníaco. De este modo se puede lograr tiempos de reacción cortos, incluso en el caso de un material de partida de partículas gruesas.

Por regla general la diamida es difícilmente soluble en el alcohol plurivalente, precipita ya durante la reacción, o como muy tarde después de terminada la reacción y el enfriamiento de la mezcla de reacción. Esta diamida es muy pura y puede ser separada de un modo sencillo por filtración o por centrifugación. A veces es ventajoso mejorar la capacidad de la diamida para filtración por adición de un disolvente inerte, tal como por ejemplo acetona. La porción de la diamida que no precipita después del enfriamiento de la mezcla de reacción, puede ser separada de las aguas madres o conducida al circuito junto con las mismas.

El procedimiento según la invención posee la ventaja, frente al procedimiento conocido de las DOS, de que la amonólisis se realiza a presiones menores. Además de ello, la

diamida precipita desde la mezcla de reacción, después de su formación, como sustancia sólida con elevada pureza y en gran rendimiento, y no está impurificada ni por sustancias de partida ni por subproductos o productos acompañantes. La separación de la diamida se realiza por consiguiente de modo sencillísimo por filtración o centrifugación. Mientras que en el caso del procedimiento conocido el amoníaco en exceso tiene que ser expulsado y condensado para su nueva utilización, en el caso del procedimiento según la invención permanece disuelto en su mayor parte en el alcohol plurivalente, y puede ser conducido al circuito conjuntamente con éste. Además, la cantidad necesaria de amoníaco es menor que en el caso del procedimiento conocido.

#### 15 Ejemplo 1

En un autoclave de vidrio de 1 litro, susceptible de ser calentado, provisto de agitador, se suspendieron 250 g (1,30 moles) de poli(tereftalato de etileno) molido (diámetro medio de granos  $\leq$  0,5 mm) en 750 g de etilenglicol. El autoclave fue calentado a 140°C y llevado a 9 atmósferas absolutas por introducción de amoníaco gaseoso. El contenido del autoclave fue agitado continuamente y dejado durante 3 horas en las condiciones mencionadas. Después del enfriamiento y de la disminución de la presión del autoclave hasta la presión normal, la

suspensión de reacción fue filtrada y el residuo existente en el filtro fue lavado dos veces con 400 ml de agua o 400 ml de metanol. El residuo se secó a 60°C en vacío. De ello resultaron 203,5 g (95,3 % de la teoría) de diamida de ácido tereftálico pura.

5

### Ejemplo 2

En el sistema de aparatos descrito en el ejemplo 1 se suspendieron 250 g (1,30 moles) de granulado de poli(tereftalato de etileno) diámetro de granos 5 mm) en 750 g de etilenglicol, y después se calentó a 235°C. A esta temperatura se disolvió completamente el poliéster. Después se enfrió a 140°C, precipitando de nuevo poliéster en forma fina. En esta suspensión se introdujo después amoníaco, de modo análogo al del ejemplo 1, y se agitó durante 2 horas a 140°C/9 atmósferas absolutas. Después se enfrió, se disminuyó la presión y se transformó de modo análogo al del ejemplo 1. Resultaron 205 g de diamida de ácido tereftálico pura, blanca, en forma de polvo (96% de la teoría).

10

15

20

### Ejemplo 3

215,8 g (1,30 moles) de ácido tereftálico y 1000 g (16,13 moles de etilenglicol fueron calentados a reflujo a 190-195°C,

25

5 con agitación, durante una hora, con adición de 0,5 % en peso, referido al ácido tereftálico, de trióxido de antimonio. A continuación se separaron por destilación a presión normal, en el curso de 5 horas, 600 g de glicol/agua (aproximadamente 47 g de agua de reacción). El residuo oleoso, una mezcla de oligómeros en glicol en exceso, se transfirió al autoclave descrito en el ejemplo 1, se atemperó a 140°C y se introdujo amoníaco. A una presión de 9 atmósferas absolutas se agitaron durante 3 horas, después se enfriaron y se disminuyó la presión. La suspensión de reacción formada fue transformada del modo descrito en el ejemplo 1. Resultaron 198 g (93 % de la teoría) de diamida de ácido tereftálico pura.

#### Ejemplo 4

15 En el sistema de aparatos descrito en el ejemplo 1, 250 g (1,30 moles) de poli(tereftalato de etileno) en forma de polvo se suspendieron en 750 g de glicerina, y se calentaron a 140°C; después se ajustó el autoclave a 9 atmósferas absolutas por introducción de amoníaco. Con agitación la mezcla fue dejada de reacción durante 12 horas en estas condiciones, después se enfrió y se disminuyó la presión. Con objeto de mejorar la capacidad para filtración, la suspensión de reacción fue mezclada con 500 ml de acetona, después filtrada, lavada con 200 ml de agua y 200 ml de acetona, y finalmente se secó el residuo de

la filtración. Resultaron 188 g de diamida de ácido tereftálico pura (88 % de la teoría).

#### Ejemplo 5

5

125 g (0,568 moles) de un poliéster de ácido tereftálico y butanodiol-1,4 se suspendieron en 400 g de butanodiol-1,4 y se trataron con amoníaco a 140°C/9 atmósferas absolutas durante 12 horas, y después se transformaron, del modo descrito en el ejemplo 4. Resultaron 88 g (94,5 % de la teoría) de diamida de ácido tereftálico en forma purísima.

10

#### Ejemplo 6

15

125 g de un poliéster de ácido tereftálico y p-xililenodiol se suspendieron en 300 g de glicol y se trataron con amoníaco gaseoso del modo descrito en el ejemplo 1. La temperatura fue de 140°C, la presión de 6 atmósferas absolutas, y el tiempo de reacción de 8 horas. Rendimiento de diamida de ácido tereftálico: 76,5 g (92 % de la teoría).

20

#### Ejemplo 7

215,8 g (1,30 moles) de ácido isoftálico y 1000 g (16,13 moles) de etilenglicol fueron transformados de modo análogo al del

25

ejemplo 3 en una mezcla de oligoésteres muy viscosa-disuelta en etilenglicol en exceso- que, fue después tratada con amoníaco en el sistema de aparatos descrito en el ejemplo 1. La temperatura de reacción para el tratamiento con amoníaco fue de 120°C, la presión de NH<sub>3</sub> de 9 atmósferas absolutas y el tiempo de reacción de 4 horas. Después de la transformación se obtuvieron 185 g de diamida de ácido isoftálico pura (80,8 % de la teoría). Otros 23 g (10,8 % de la teoría) de diamida de ácido isoftálico pudieron ser identificados en forma disuelta en las aguas madres.

#### Ejemplo 8

234 g (1,30 moles) de ácido metiltereftálico y 1000 g (16,15 moles) de etilenglicol fueron transformados de modo análogo al del ejemplo 3 en una mezcla de oligoésteres, -disuelta en etilenglicol en exceso - y después tratados con amoníaco en el sistema de aparatos descrito en el ejemplo 1. La temperatura de reacción fue de 140°C, la presión de NH<sub>3</sub> de 9 atmósferas absolutas y el tiempo de reacción de 10 horas. Se separó por filtración, se lavó con agua y con metanol, y se secó. Resultó una diamida de ácido metiltereftálico puramente blanca, en forma de polvo (56 % de la teoría, correspondiente a 130 g). A partir de las aguas madres, consistentes en glicol, agua y metanol, neutralizadas con HCl, cristalizaron durante la noche

nuevamente 40 g de diamida de ácido metilbrefáltico (17,4 % de la teoría); un resto de 50 g (21,6 % de la teoría) pudo ser finalmente identificado todavía en las aguas madres. El rendimiento total fue por consiguiente de 220 g (= 95 % de la teoría).

5

#### Ejemplo 9

224 g (1,30 moles) de ácido ciclohexano-1,4-dicarboxílico y 1000 g de etilén-glicol fueron transformados de modo análogo al del ejemplo 3 en una mezcla de oligoésteres - disuelta en etilén-glicol en exceso - y después tratados con amoníaco en el sistema de aparatos descrito en el ejemplo 1. La temperatura de reacción fue de 120°C, la presión de NH<sub>3</sub> de 9 atmósferas absolutas, y el tiempo de reacción de 10 horas. Después fue reducida la presión y se enfrió a temperatura ambiente. A la suspensión de reacción que contenía aproximadamente 400 g de glicol se añadieron 220 ml de acetona, después se separó por filtración y se lavó con 200 ml de agua y 100 ml de metanol. Después del secado quedaron 195 g (87,2% de la teoría) de diamida de ácido ciclohexano- 1,4-dicarboxílico en forma purísima. En las aguas madres pudo ser identificada más cantidad de diamida de ácido ciclohexano-1,4-dicarboxílico (10 % de la teoría) en forma disuelta.

10

15

20

25

### Ejemplo 10

280 g (1,30 moles) de ácido naftalendicarboxílico-2,6 y 1000 g de etilén-glicol fueron transformados de modo análogo al del ejemplo 3 en una mezcla de oligoésteres -disuelta en etilén-glicol en exceso-, y después tratados con amoníaco en el sistema de aparatos descrito en el ejemplo 1. La temperatura de reacción fue de 140°C, la presión de NH<sub>3</sub> de 9 atmósferas absolutas, y el tiempo de reacción de 15 horas. Después de la disminución de la presión y del enfriamiento, se añadieron a la suspensión de reacción 200 ml de acetona, se separó por filtración y se lavó con 200 ml de agua y 100 ml de metanol. Después del secado quedaron 208 g (75 % de la teoría) de diamida de ácido naftalen-2,6-dicarboxílico. En las aguas madres se identificaron, en forma disuelta, otros 11 g de diamida (4% de la teoría) así como 11 % de la teoría (37 g) de glicoléster-amida de ácido naftalendicarboxílico y 10% de oligoéster no reaccionado.

### Ejemplo 11

168 g (0,65 moles) de ácido difeniletardicarboxílico y 1000 g de etilén-glicol fueron transformados de modo análogo al del ejemplo 3 en una mezcla de oligoésteres -disuelta en etilén-glicol en exceso-, pero con la diferencia de que en un intervalo de 7 horas se separaron por destilación 800 g de glicol/agua

(aproximadamente 23 g de agua de reacción). El residuo, muy viscoso, se transfirió al autoclave descrito en el ejemplo 1, se añadieron 300 g de glicol de nueva aportación y se calentó a 140°C. Luego se introdujo amoníaco. La temperatura de reacción fue de 140°C, la presión de NH<sub>3</sub> de 9 atmósferas absolutas, y el tiempo de reacción de 4 horas. Después de la disminución de la presión y del enfriamiento, se añadieron a la suspensión de reacción 150 ml de acetona, se separó por filtración y se lavó con H<sub>2</sub>O/metanol. El rendimiento fue de 95 g (75,1 % de la teoría). Las aguas madres contenían disueltos 5 % de diamida, 5% de esteramida, así como aproximadamente 30% de oligoéster no reaccionado.

#### Ejemplo 12

130 g (0,65 moles) de ácido clorotereftálico y 1000 g de etilén-glicol fueron transformados en una mezcla de oligoésteres -disuelta en etilén-glicol en exceso-, con amoníaco y transformados posteriormente de modo análogo al del ejemplo 11. El rendimiento de diamida precipitada fue de 81 g (64% de la teoría). En las aguas madres se encontraron aún 20% de producto de partida no reaccionado, 6 % de esteramida, así como 11 % de diamida.

#### Ejemplo 13

215,8 g (1,3 moles) de ácido tereftálico y 1500 g (10,4 moles)

de ciclohexano-1,4-dimetanol fueron hechos reaccionar de modo análogo al del ejemplo 3, con adición de 0,5% en peso de trióxido de antimonio, referido al ácido tereftálico. La mezcla de oligómeros resultante, en ciclohexano-1,4-dimetanol en exceso, fue transferida al autoclave descrito en el ejemplo 1, atemperada a 140°C y se introdujo amoníaco. A una presión de 9 atmósferas absolutas se agitó durante 15 horas, después se enfrió y se disminuyó la presión. Se añadieron después 1000 ml de metanol y la suspensión fina de reacción se filtró. El residuo existente en el filtro se lavó primero con 400 ml de agua y a continuación con 400 ml de metanol. Después el residuo se secó a 60°C en vacío, y después de ello resultaron 201 g (94,4 % de la teoría) de diamida de ácido tereftálico pura.

La presente solicitud que corresponde a la presentada en República Federal Alemana, el 3 de Agosto de 1974, bajo el número P 24 37 470.7, se acoge a los beneficios del Artículo 51 del vigente estatuto sobre Propiedad Industrial.

## REIVINDICACIONES

5                    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:

10                    1ª.- Procedimiento para la preparación de diamidas de ácidos dicarboxílicos aromáticos y cicloalifáticos por amonólisis de un oligoéster o poliéster del correspondiente ácido dicarboxílico con un alcohol plurivalente, caracterizado porque la amonólisis se lleva a cabo en un alcohol plurivalente a  
15                    temperaturas de 30 a 200°C y presiones parciales de amoníaco de 0,1 a 50 atmósferas absolutas.

                    2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque se parte de un oligoéster o poliéster de ácidos tereftálico, ácido isoftálico, ácido 2,6-naftalendicarboxílico, ácido difenil-4,4'-dicarboxílico, ácido difenilóter-4,4'-dicarboxílico, ácido difeniltioéster-4,4'-dicarboxílico, ácido difenil-  
20                    metano-4,4'-dicarboxílico, ácido difeniletano-4,4'-dicarboxílico, ácido difenilsulfon-4,4'-dicarboxílico o ácido ciclohexano-1,4-dicarboxílico.

                    3ª.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª y 2ª, caracterizado porque la amonólisis se lleva a cabo en etilén-  
25                    gli-

col, xilenodiol-1,4, butanodiol-1,4, ciclohexano- 1,4-dimetanol o glicerina.

5 4ª.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª a 3ª, caracterizado porque se parte de un éster oligómero o polímero de etilén-glicol y de ácido dicarboxílico, y la amonólisis se lleva a cabo en etilén-glicol.

5ª.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª a 4ª, caracterizado porque se utilizan temperaturas de 50 a 160°C.

10 6ª.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª a 5ª, caracterizado porque se utilizan presiones parciales de amoníaco de 1 a 20 atmósferas absolutas.

7ª.- Procedimiento para la preparación de diamidas de ácidos dicarboxílicos aromáticos y cicloalifáticos.

15 Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

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

Madrid,

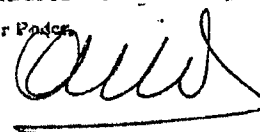
P.A.

12 AGO. 1975

20

Alberto de Elizaburu

Por Poder



25