



(19) ES	(11) NUMERO	(10) A 1
(21)	454228	
(22)	FECHA DE PRESENTACIÓN	
	3-12-1976	

PATENTE DE INVENCION

(30) PRIORIDADES:		
(31) NUMERO	(32) FECHA	(33) PAIS
29962 A/75	3-12-1975	ITALIA
(47) FECHA DE PUBLICIDAD	(51) CLASIFICACION INTERNACIONAL	(62) PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	C07C	
(64) TITULO DE LA INVENCION		
"PROCEDIMIENTO PARA LA SINTESIS DE N-METIL-UREAS"		
(71) SOLICITANTE (ES)		
SNAMPROGETTI S.p.A., sociedad anónima italiana.		
DOMICILIO DEL SOLICITANTE		
MILAN (Italia), Corso Venezia, 16.		
(72) INVENTOR (ES)		
Ugo ROMANO, Giuseppe IORI		
(73) TITULAR (ES)		
(74) REPRESENTANTE		
Don JAIME GOMEZ-ACEBO Y MODET		

La presente invención se refiere a un procedimiento para la síntesis de N-metil-ureas, consistente en la hidrogenación catalítica de mezclas de una urea y formaldehído.

5 Un método ya conocido para obtener N-metil-ureas (Patente norteamericana No 2.422.400) consiste en la hidrogenación catalítica de N-metilol ó N-metoxi ureas a un pH comprendido entre 10,5 y 7.

Este método comprende dos etapas:

10 a) formación de un producto intermedio metilólico a partir de una urea y formaldehído en ambiente básico y separación del mismo de la mezcla de reacción,

 b) hidrogenación catalítica del metilol intermedio después de haber corregido convenientemente el pH del
15 ambiente de reacción a los valores deseados.

Ahora se ha descubierto, y ello constituye el objeto de la presente invención, que es posible obtener, en una sola etapa y con rendimientos prácticamente cuantitativos, una N-metil-urea hidrogenando, en ambiente ácido, la mezcla
20 de una urea y formaldehído en presencia de un catalizador metálico activo para la hidrogenación.

De este modo se evitan las etapas de formación y separación de las metilol-ureas y se procede, en una única etapa, a la síntesis de la N-metil-urea deseada.

25 Por lo que respecta a las condiciones generales de síntesis, se opera a alta presión, alimentándose la urea que deba metilarse y el formaldehído en cantidades estequiométricas (1 mol de formaldehído por cada grupo

metálico que se desee introducir), en presencia del disolvente de hidrogenación, por ejemplo metanol.

La reacción tiene lugar a un pH de 3-5, en presencia del catalizador (1-10 % en peso respecto a la urea cargada) y bajo presión de hidrógeno.

La presión de reacción está comprendida entre 20 y 150 kg/cm² y la temperatura entre 50 y 150°C.

El formaldehído se emplea ya sea como solución acuosa al 37 %, ya sea como paraformaldehído amorfo en solución metanólica, o bien como trioxano.

El catalizador es un metal activo para la hidrogenación de uso común (por ejemplo Ni, Pt, Pd) soportado sobre material inerte.

El catalizador puede ser reciclado varias veces sin perder la actividad inicial.

EJEMPLO 1

En un autoclave de alta presión de 2 litros se cargan 210 g (2,5 moles) de etilen urea comercial, 150 g (5 moles) de paraformaldehído, 400 cc de metanol, 10 g de Pd al 5 % sobre C, H₃PO₄ hasta un pH 3.

Se aplican 10 kg/cm² de presión de hidrógeno y se inicia la agitación y el calentamiento. La absorción comienza a 80°C aproximadamente y continúa rápidamente hasta una temperatura de 130-140°C. La presión se mantiene a 30 kg/cm².

En estas condiciones no se observa ya, al cabo de dos horas absorción alguna de hidrógeno.

Se descarga el autoclave, se filtra el catalizador que,

lavado varias veces con agua y metanol, puede ser reutilizado, se neutraliza con sosa la solución, se destila el metanol y se obtiene la N,N'-dimetil-imidazolín-2-ona-1-urea, con selectividad y rendimiento > 95 %.

5 EJEMPLO 2

En un autoclave de alta presión de 2 litros se cargan 215 g (2,4 moles) de N,N'-dimetil-urea y 150 g de paraformaldehído (5 moles), 400 cc de metanol, 10 g de Pd al 5 % sobre C y H₃PO₄ hasta un pH ~ 3.

10 Se aplican 30 kg/cm² de presión de hidrógeno y se inicia la agitación y el calentamiento.

A una temperatura de 100°C y a 80 kg/cm² de presión, la absorción de hidrógeno es rápida y termina al cabo de aproximadamente 1 hora de reacción.

15 Se obtiene NN,N'N' tetrametil urea con rendimiento y selectividad > 90 %.

Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de ponerlo en práctica, se hace constar que todo cuanto no altere, cambie o modifique su principio fundamental, puede quedar sometido a variaciones de detalle. También se hace constar que esta invención corresponde a la descrita en la Solicitud de Patente Nº 29962 A/75, deposita en Italia en 3 de Diciembre de 1975, cuya prioridad se reivindica de acuerdo con los Convenios Internacionales en vigor, siendo lo esencial y por lo que se solicita
25 Patente de Invención, por veinte años, lo que queda resumido en las siguientes reivindicaciones:

REIVINDICACIONES

1^a.- Procedimiento para la síntesis de N-metil-ureas, caracterizado porque se hidrogena, en ambiente ácido, una mezcla de una urea y formaldehído.

5 2^a.- Procedimiento según la reivindicación 1^a, caracterizado porque la reacción se lleva a cabo en presencia de un catalizador de hidrogenación.

 3^a.- Procedimiento según las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque la reacción se efectúa a
10 una temperatura comprendida entre 50 y 150°C.

 4^a.- Procedimiento según las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque la reacción se efectúa a una presión comprendida entre 20 y 150 kg/cm².

 5^a.- PROCEDIMIENTO PARA LA SINTESIS DE N-METIL-UREAS,
15 tal y como queda descrito y reivindicado en la presente memoria que consta de cuatro hojas mecanografiadas por una sola cara.

BARCELONA, 3 de Diciembre de 1976.

SNAMPROGETTI S.p.A.
P. P.
J. GOMEZ-ACEBO Y MODET
P. B. Fdo. E. Ferracols/Colón

