

MINISTERIO DE INDUSTRIA Y ENERGIA
Registro de la Propiedad Industrial



ESPAÑA

20 DIC. 1978
Concedido el Registro de acuerdo
con los datos que figuran en la pre-
sente descripción y según el con-
tenido de la Memoria adjunta.
(Case 19/77)

[Handwritten signature]

PATENTE DE INVENCION

(11) NUMERO	(10) A1
471529	
(21) ES	
(22) FECHA DE PRESENTACION	
6 JUL. 1978	

(30) PRIORIDADES:	(12) FECHA	(13) PAIS
(31) NUMERO		
25474-A/77	7 Julio 1977	Italia

(47) FECHA DE PUBLICIDAD	(51) CLASIFICACION INTERNACIONAL	(62) PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	C07D/A61K	

(54) TITULO DE LA INVENCION
"UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION EN CONTINUO DE CLORO-BIS- (ALQUILAMINO)-S-TRIACINA"

(71) SOLICITANTE (ES)
RUMIANCA S.p.A.

DOMICILIO DEL SOLICITANTE
Corso Montevecchio 37/39, TURIN (Italia)

(72) INVENTOR (ES)
Luciano BALDI - Renato FRANCESE - Franco COLLECCHIA.

(73) TITULAR (ES)
RUMIANCA S.p.A.

(74) REPRESENTANTE
D. JAIME ISERN CUYAS, Agente Oficial de la Propiedad Industrial.

POOR
QUALITY

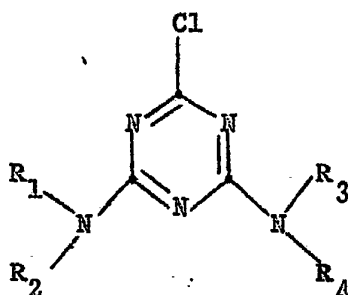
MEMORIA DESCRIPTIVA

El presente invento se refiere a la preparación de cloro-di(alquilamino)-s-triacinas por medio de un procedimiento continuo. Las cloro-di(alquilamino)-s-triacinas son compuestos que tienen la fórmula general:

5

10

(I)



en donde

15

R₁, R₂, R₃ y R₄ son, independientemente, un átomo de hidrógeno o un radical alquilico conteniendo de 1 a 5 átomos de carbono y eventualmente también ciertos otros grupos funcionales.

20

Las cloro-di(alquilamino)-s-triacinas son herbicidas valiosos y los compuestos mas destacados pertenecientes a este grupo son: 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina (atracina), 2-cloro-4,6-di(etilamino)-s-triacina (simacina) y 2-cloro-4,6-di-(isopropilamino)-s-triacina (propacina).

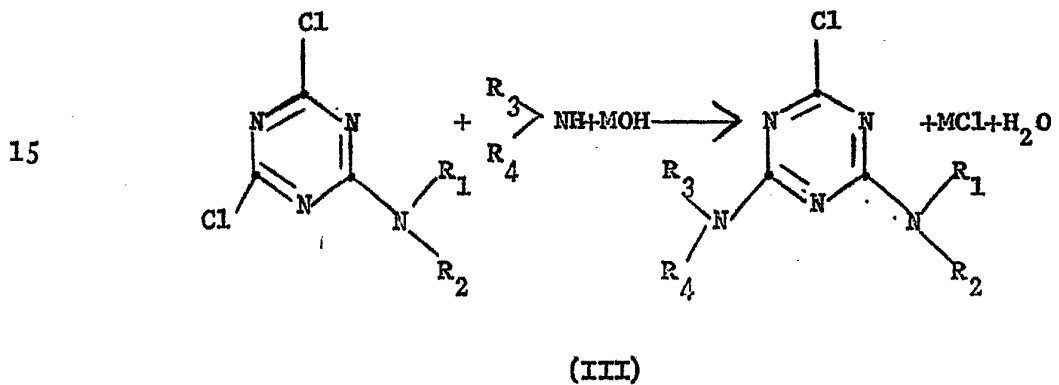
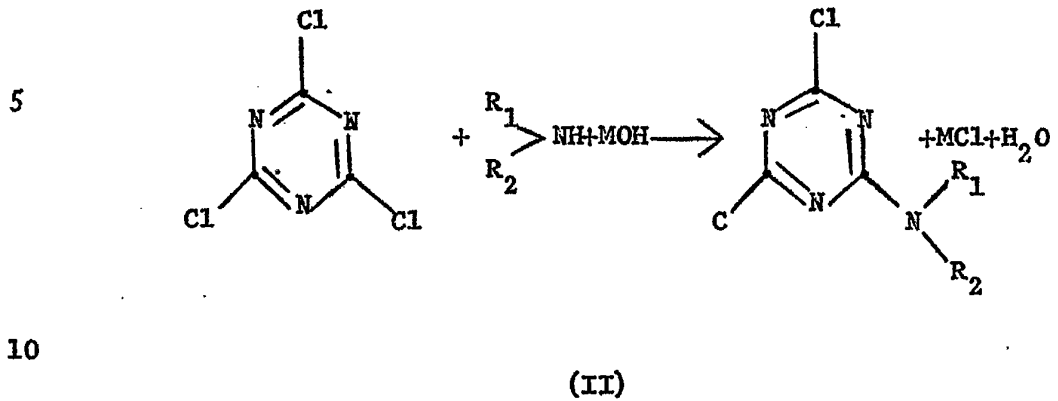
25

Las características herbicidas de estos compuestos se describen en la patente estadounidense 2,891.855 que se cita aquí como referencia.

30

Las cloro-di(alquilamino)-s-triacinas se preparan, generalmente, a partir de cloruro cianúrico mediante la substitución sucesiva de dos átomos de cloro por grupos alquilamínicos primarios o secundarios, tal como describe, por ejemplo, W. Pearlman y C.K. Barks en J. Am. Chem. Soc.

70, 3726 (1948). En la práctica la reacción se lleva a cabo según el esquema general:



en donde M representa un metal alcalino.

En particular la preparación de la atracina se lleva a cabo en etapas discontinuas haciendo reaccionar, primero, cloruro cianúrico con isopropilamina, en presencia de hidróxido sódico, para obtener 2,4-dicloro-6-isopropilamino-s-triacina. Esta última se hace reaccionar en una segunda etapa con etilamina y con una cantidad adicional de hidroxido sódico, con formación subsiguiente del producto deseado: 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamina-s-triacina.

En el arte y en el procedimiento para la preparación de cloro-di(alquilamino)-s-triacinas se han adoptado diversos sistemas, especialmente con respecto a la compo-

ción del medio en donde se efectúa la reacción.

Así pues, por ejemplo, se ha propuesto llevar a cabo la reacción en un medio acuoso en presencia de un agente tensoactivo destinado a mantener el cloruro cianúrico en suspensión en forma de un sólido subdividido. Estos sistemas reactivos son inapropiados para aplicarse en escala comercial, especialmente en vista de las bajas velocidades de reacción obtenibles.

Se conoce también llevar a cabo la reacción en mezcla de agua - compuesto orgánico en una sola fase, por ejemplo en mezclas de agua-acetona y agua-dioxano, utilizando un compuesto orgánico que disuelve el cloruro cianúrico y es miscible con agua en todas las proporciones. Este procedimiento tiene desventajas resultantes esencialmente de la formación de subproductos indeseables, tal como, por ejemplo, tri(alquilamino)-s-triacina y productos de hidrólisis, con el consiguiente notable descenso del rendimiento del producto reaccional deseado.

De aquí que la purificación de este resulta difícil y dicho procedimiento es antieconómico. Para mejorar el rendimiento se ha propuesto llevar a cabo la reacción a temperaturas comprendidas entre 0^o y -15^oC, para minimizar el fenómeno de hidrólisis. Un método de esta índole requiere prolongados tiempos de reacción y no presenta problemas notables en la aplicación a escala comercial.

Se conoce también recurrir a mezclas de agua-compuesto orgánicos de dos fases tal como agua-clorobenceno, agua-tetracloruro de carbono y agua-tolueno, utilizando un compuesto orgánico que disuelva el cloruro cianúrico y que es prácticamente inmisible en agua.

pleto dicho cloruro cianúrico en 2,4-di-cloro-6-alquilamino-6-triacina, y descargar el producto reaccional de (a) por el extremo de salida de dicha primera zona de reacción tubular;

- 5 (b) alimentar de forma continua dicho producto reaccional de (a), con eventual enfriamiento y eventual separación de la fase acuosa de dicho producto reaccional de (a), por el extremo de entrada de una segunda zona de reacción tubular, alimentar de forma continua a dicha segunda zona de reacción una base inorgánica, una segunda alquilamina y agua, alimentándose por lo menos en parte dicha base inorgánica de (b) y dicha segunda alquilamina por el extremo de entrada de dicha segunda zona de reacción tubular, alimentándose dicha 2,4-di-cloro-6-alquilamino-s-triacina, base inorgánica de (b) y segunda alquilamina en proporciones sustancialmente estequiométricas y reaccionando en dicha segunda zona de reacción bajo condiciones de turbulencia y a una temperatura no superior a 100°C para convertir de forma sustancialmente completa dicha 2,4-di-cloro-6-alquilamino-s-triacina en cloro-bis(alquilamino)-s-triacina; y
- 10
- 15
- 20
- 25 (c) descargar de forma continua el producto de reacción de (b) de la segunda zona de reacción y recuperar la cloro-bis(alquilamino)-s-triacina de dicho producto reaccional de (b).

Las etapas a) y b) se llevan a cabo en dos reactores tubulares separados con eventual eliminación de material y/o de calor entre una etapa y la otra.

30 Según una modalidad preferida se utiliza un único reactor tubular y no tiene lugar separación intermedia de material.

En una modalidad de este tipo el cloruro cianúrico se alimenta de forma continua al extremo de entrada del reactor junto con la cantidad de los otros reactivos necesaria para la formación de la 2,4-dicloro-6-alquilamino-s-triacina. Los reactivos necesarios para la formación de la cloro-di(alquilamino)-s-triacina se alimentan de forma continua a una posición intermedia apropiada del reactor. Los productos de la reacción se descargan de forma continua del extremo de salida del reactor y se someten a los tratamientos usuales para la separación de la cloro-di(alquilamino)-s-triacina. Sería también posible, en el caso de un solo reactor, proporcionar el enfriamiento intermedio de la masa entre las dos etapas de la reacción. Además es también posible alimentar la amina y la base inorgánica - parcialmente al extremo de entrada de la zona de reacción tubular y parcialmente a uno o mas puntos a lo largo de dicha zona de reacción tubular. Esto puede obviamente obtenerse para una sola etapa o para ambas etapas, tanto en el caso de un solo reactor como en el caso de dos reactores separados.

Los disolventes que son apropiados para esta finalidad son aquellos que son inertes bajo las condiciones de la reacción y tienen buen poder disolvente para el cloruro cianúrico. Ejemplos de disolventes orgánicos - apropiados son éter dietílico, dioxano, dietil-cellosolve, benceno, tolueno, xileno, clorobenceno, acetona, metil-etil-cetona, tetracloruro de carbono, u otros disolventes orgánicos conocidos en el arte con respecto a la preparación de las cloro-di(alquilamino)-s-triacinas. Los disolventes orgánicos que forman un sistema de una sola fase o de dos fases con agua pueden utilizarse en el procedimiento del invento.

Ejemplos de sistemas de una sola fase son agua-acetona y agua-dioxano y ejemplos de sistemas de dos fases son - agua-benceno y agua-clorobenceno. En la práctica el cloro cianúrico, disuelto en el disolvente orgánico, se alimenta a la primera zona de reacción tubular y la base orgánica y la amina se alimentan en forma de una o mas so luciones acuosas.

En el caso en que la amina es insoluble o escasamente soluble en agua puede proporcionarse una ali mentación independiente para dicha amina.

De conformidad con el presente invento el me dio en que se lleva a cabo la reacción no es tan importan te como el mantenimiento de elevadas cinéticas de reac ción en un sistema reactivo tal como el anteriormente des crita.

Para esta finalidad la etapa (a) puede llevarse a cabo bajo condiciones isotérmicas, a una temperatura comprendida entre 30° y 90°C, o bajo condiciones adiabá ticas con una temperatura máxima no superior a 90°C.

Cuando se opera bajo condiciones isotérmicas puede proporcionarse un intercambiador de calor, destinado a mantener la temperatura en la zona de reacción tubular entre dichos límites. Cuando se opera bajo condiciones adiabáticas se entenderá que no existe intercambiador de calor de modo que la temperatura se eleva desde el valor de entrada hasta dicha temperatura máxima o dicho aumento de temperatura se controla por medio de intercambio diferencial en las diversas zonas del reactor.

Cuando la reacción se lleva a cabo de forma adiabática la temperatura de entrada del reactivo no es importante por cuanto la reacción se inicia fácilmente,

aún a temperaturas relativamente bajas, con un aumento sub-
siguiente rápido de la temperatura. Los citados reactivos
se alimentan, convenientemente, a la temperatura del am-
biente aún cuando es posible utilizar temperaturas de en-
5 trada superiores o inferiores a la temperatura del ambien-
te.

La etapa (b) puede llevarse a cabo bajo
condiciones isotérmicas a una temperatura comprendida en-
tre 40°-50°C y 100°C o bajo condiciones adiabáticas, en el
10 sentido antes expuesto, con una temperatura máxima no su-
perior a 100°C. Cuando la reacción se lleva a cabo bajo
condiciones adiabáticas la temperatura de entrada en la
etapa (b) se mantiene, por lo general, a un valor de por
lo menos 20°-30°C. El control de esta temperatura de en-
15 trada puede efectuarse por medio de un intercambiador de
calor dispuesto entre las dos etapas de reacción, o también
por medio de la solución acuosa de la base inorgánica y de
la amina alimentada en la etapa (b). Obviamente es posi-
ble influenciar simultáneamente la temperatura por medio
20 de los dos factores antes citados.

Por lo general la reacción se lleva a ca-
bo sin aplicar ninguna sobrepresión o bien se aplica la so-
brepresión necesaria para mantener la masa reaccional en la
fase líquida a la temperatura de la reacción.

25 Bajo las condiciones descritas las reaccio-
nes de las etapas (a) y (b) se completan o sustancialmente
se completan en un tiempo del orden de unos pocos minutos
y en cualquier caso en un tiempo inferior a unos diez mi-
nutos.

30 Las cloro-di(alquilamino)-s-triacinas así
obtenidas tienen una pureza del 99% o mas, lo que demues-

tra la baja formación de sub-productos. Por consiguiente se considera que la operación a temperaturas relativamente elevadas y por tanto con elevadas velocidades de reacción, en un sistema reactivo como el del presente invento favorece la formación del producto reaccional deseado, mientras que es usual en el arte conocido utilizar bajas temperaturas para minimizar la formación de sub-productos. Además debe considerarse que en el procedimiento del presente invento el medio en donde se lleva a cabo la reacción no es particularmente crítico y que los resultados deseados se obtienen con sistemas de agua-disolvente orgánico monofásicos y bifásicos, mientras que en los procedimientos del arte conocido el medio reaccional influencia apreciablemente el curso de dicha reacción.

15 Siguiendo el procedimiento del presente invento pueden prepararse todos los compuestos definibles por medio de la fórmula general (I), en donde R_1 , R_2 , R_3 y R_4 son, independientemente, hidrógeno o radicales lineales o ramificados o aún cíclicos, iguales o distintos entre sí con 1 a 5 átomos de carbono. Ejemplos de estos radicales alquílicos son; metilo, etilo, isopropilo, ciclopropilo, n-butilo, butilo secundario y butilo terciario.

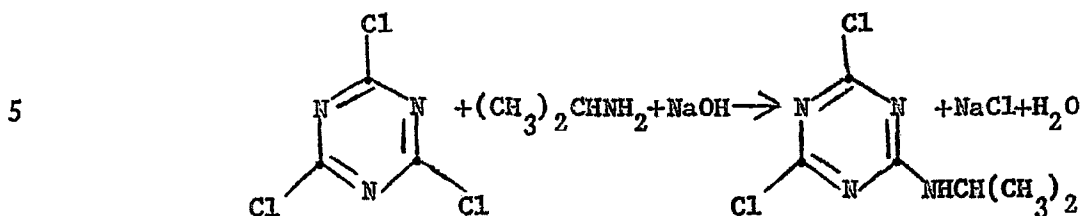
20 Sin embargo, en la descripción que sigue se hará referencia a la preparación de 2-cloro-4-etilemino-6-isopropilamino-s-triacina.

25 Se procede de este modo con el fin de simplificar, teniendo en cuenta que prevalecen consideraciones totalmente similares para las otras cloro-di(alquilamino-s-triacinas).

30 Etapa (a)

En esta etapa se cargaron en la primera zona de reacción tubular: cloruro cianúrico, isopropilamina

y hidróxido sódico para producir 2,4-dicloro-6-isopropilamino-s-triacina según la reacción:



10

(IV)

Las cantidades de isopropilamina y de hidróxido sódico son equivalentes, o casi equivalentes, a las precisas para la formación de 2,4-dicloro-6-isopropilamino-s-triacina. En lugar de hidróxido sódico puede utilizarse carbonato sódico o el hidróxido o carbonato de otros metales alcalinos tal como litio y potasio. Según una modalidad preferida se utiliza isopropilamina en un excesotal que se neutralice el cloruro de hidrógeno que se forma en la reacción.

20

El cloruro cianúrico se alimenta, como norma, en forma de una solución en el disolvente orgánico pre-seleccionado. Los disolventes orgánicos que se prefieren para los fines de este invento son aquellos citados previamente ya que, además de las citadas características, son fácilmente separables, por ejemplo mediante destilación, del producto final de la reacción.

25

La base inorgánica y la amina se alimentan, convenientemente, en forma de una o mas soluciones acuosas.

30

Las cantidades de disolventes orgánicos y de agua alimentados al medio reaccional no son particularmente críticas; además es conveniente mantener una relación

ponderal entre los dos entre 3:1 y 3:2. Se obtienen buenos resultados además regulando las alimentaciones de modo que la concentración de la 2,4-dicloro-6-isopropilamino-s-triacina sea del orden de 10 a 20% en peso con respecto al disolvente orgánico en el producto descargado de la etapa (a).

Los reactores útiles para los fines del presente invento son los reactores tubulares alargados en donde la relación longitud/diámetro es elevada, por ejemplo superior a alrededor de 2/1. Además según un aspecto básico del presente invento la masa reaccional se mantiene en condiciones de turbulencia, por ejemplo mediante elección apropiada del diámetro del reactor y de la velocidad de la masa reaccional, utilizando un agitador, o mediante la introducción en el reactor de cuerpos de relleno (de forma esférica, helicoidal u otras), de diafragmas parciales, de placas perforadas, etc. Obviamente es posible operar con uno o mas de estos factores. Así pues, por ejemplo, en un reactor con un diámetro de 2-3 cm, provisto con cuerpos de relleno, se mantiene una velocidad lineal de la masa de reactivo superior a aproximadamente 0,5 metros/segundo en el caso de un sistema de una sola fase. En el caso de un sistema de dos fases es conveniente asegurar dimensiones de la fase dispersada de menos de 100 micras; y preferentemente inferiores a 10 micras. Para esta finalidad se puede recurrir también a la adición de agentes tensoactivos, junto con los reactivos, al medio de reacción.

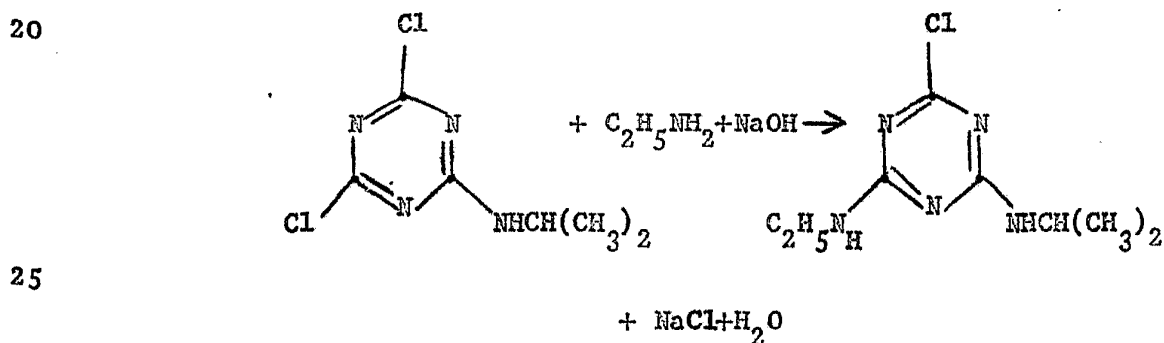
Como ya se ha indicado la reacción puede llevarse a cabo bajo condiciones isotérmicas o adiabáticas. En el primer caso se obtienen excelentes resultados con temperaturas del orden de 40-60°C y en el segundo caso con temperaturas máximas que no excedan de 60-70°C y, de

preferencia, del orden de 55^o-60^oC. Cuando la reacción se lleva a cabo adiabáticamente los reactivos y el medio reaccional se alimentan convenientemente, a la temperatura del ambiente.

5 Operando bajo las condiciones descritas el tiempo de la reacción está comprendido, por lo general, entre alrededor de 20 segundos y alrededor de 2 minutos y la masa reaccional se conduce al segundo reactor o a la segunda porción del reactor único, después de eventual enfriamiento. En el caso en donde la reacción se lleva a cabo con dos reactores separados es también posible separar el material tal como, por ejemplo, la fase acuosa.

Etapa (b)

15 En la etapa (b) se carga en la segunda zona de reacción tubular la 2,4-dicloro-6-isopropilamino-s-triacina procedente de la etapa (a), etilamina e hidróxido sódico para producir 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina según la reacción:



(v)

Las cantidades de etilamina y de hidróxido sódico son equivalentes o aproximadamente equivalentes a las necesarias para la formación de la 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina. Tal como ya se ha indicado el

30

compuesto y la naturaleza y composición del medio reaccional.

Es posible, aunque no conveniente, llevar a cabo la reacción en condiciones de temperatura en las que se produzca dicha precipitación. En estas circunstancias es conveniente recurrir a la ayuda de agentes humectantes o dispersantes tal como lignin-sulfonato de aluminio de modo que no se obstruya el reactor. Las otras condiciones para la etapa (b) coinciden totalmente con las de la etapa (a). El tiempo de reacción en la etapa (b) es generalmente del orden de 1-5 minutos/

Etapa (c)

La mezcla reaccional descargada en la salida de la segunda zona de reacción se somete al tratamiento usual para la separación de la 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-8-triacina. Por lo general esta mezcla se conduce, sin enfriamiento, al aparato para su destilación y la recuperación del disolvente orgánico. El residuo de la destilación, en forma de una densa suspensión, se somete a tratamientos, según técnicas industriales conocidas, para la separación del producto reaccional deseado.

Operando en la forma descrita el rendimiento de la reacción es generalmente de por lo menos el 98% - con respecto al cloruro cianfrico, con una pureza del producto reaccional deseado de por lo menos el 99%.

Ejemplo 1.

Se utiliza un reactor constituido por un tubo de acero inoxidable que tiene una longitud de 10 metros, un diámetro, interno de 4 mm y un diámetro externo de 6 mm. El tubo se llena con granos de arena, de un tamaño de 1,2-1,8 mm, y con una densidad de masa de $1,48 \text{ g/cm}^3$ y una densidad relativa de $2,6 \text{ g/cm}^3$.

Los primeros 2,5 metros del reactor están destinados a la formación de la 2,4-dicloro-6-alquilamino-s-triacina (primera zona reaccional; etapa (a)) y la parte restante está destinada a la formación de la cloro-di(alquilamino-s-triacina (segunda zona reaccional; etapa (b)). Mas particularmente, al extremo de entrada de la primera zona reaccional se alimentan 43 cc/min. de una solución de tolueno conteniendo 15% en peso de cloruro cianúrico y, separadamente, 13,8 cc/min. de una solución acuosa conteniendo 12,77% en peso de isopropilamina y 8,85% en peso de hidroxido sódico. De esta forma la relación molar entre cloruro cianúrico, isopropilamina e hidróxido sódico en la entrada a la etapa (a) es igual a 1:1:1. Además la reacción de la etapa (a) se lleva a cabo adiabáticamente con una temperatura de entrada de la mezcla reaccional de 18°C y con una temperatura de salida de dicha mezcla de 55°C. Entre las dos etapas de reacción no se realiza intercambio de calor y en la entrada a la etapa (b) se alimenta 11,1 cc/min. de una solución acuosa conteniendo 12,15% en peso de monetilamina y 11,25% en peso de hidroxido sódico. Esta solución se alimenta a una temperatura de 18°C. La etapa (b) se lleva a cabo también adiabáticamente y la temperatura de la masa descargada del reactor es de 70°C. La 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina se separa del producto reaccional con una pureza del 99%. El rendimiento de la reacción evaluado con respecto al cloruro cianúrico es igual al 98%.

EJEMPLO 2.

Esta prueba se lleva a cabo como en el ejemplo 1, suministrando a la entrada de la primera zona reaccional 37 cc/min. de una solución conteniendo 16% en peso de cloruro cianúrico en metil-etil-cetona e independientemente, 13,8 cc/min. de una solución acuosa contien

do 12,77% en peso de isopropilamina y 8,85% en peso de hidróxido sódico. La relación molar en la alimentación entre cloruro cianúrico, isopropilamina e hidróxido sódico es por tanto igual a 1:1:1.

5 La temperatura de entrada de la etapa (a) es igual a 18°C y la temperatura de salida es de 58°C.

10 En el extremo de entrada de la segunda zona de reacción se alimentan 11,1 cc/min. de una solución acuosa conteniendo 12,15% en peso de monetilamina y 11,25% en peso de hidróxido sódico. La temperatura de la masa reaccional en la salida del reactor es de 70°C.

15 La 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina se recupera de los productos reaccionales con una pureza del 99%. El rendimiento evaluado como en el ejemplo 1 es del 98%.

EJEMPLO 3

20 Esta prueba se llevo a cabo en un reactor tubular provisto con cuerpos de relleno, en donde el volumen de reacción en la etapa (a) es de 12 litros y en la etapa (b) es de 36 litros. El volumen se evalua en ausencia de los cuerpos de relleno. En la entrada a la etapa (a) se alimentan 1317 kg/hora de una solución toluénica conteniendo 14% en peso de cloruro cianúrico y 492 kg/hora de una solución acuosa conteniendo 12% en peso de isopropilamina y 8,12% en peso de hidróxido sódico. La reacción de la etapa (a) se lleva a cabo en condiciones adiabáticas, con una temperatura de entrada de 18°C y con una temperatura de salida de 60°C. En la entrada a la etapa (b) se alimentan 375 kg/hora de una solución acuosa conteniendo 12% en peso de monoetilamina y 10,64% en peso de hidróxido sódico.

25

30

Entre las dos etapas no se lleva a cabo inter-

cambio de calor y la mezcla reaccional que abandona el reactor tienen una temperatura de 75°C.

La 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina se separa de los productos reaccionales con una pureza del 99%. El rendimiento de la reacción es del 99,5% basado en el cloruro cianúrico.

EJEMPLO 4

Esta prueba se lleva a cabo como en el ejemplo 3, alimentando al extremo de entrada del reactor tubular 1317 kg/hora de solución conteniendo 16% en peso de cloruro cianúrico en metil-etil-cetona y 562 kg/hora de una solución conteniendo 12% en peso de isopropilamina y 8,12 % en peso de hidróxido sódico. La etapa (a) se lleva a cabo adiabáticamente con una temperatura de entrada de 18°C y una temperatura de salida de 57°C. A la entrada de la etapa (b) se alimentan 492 kg/hora de una solución acuosa conteniendo 12% en peso de monoetilamina y 10,64% en peso de hidróxido sódico. La etapa (b) se lleva a cabo bajo condiciones adiabáticas, siendo la temperatura de la masa reaccional en la salida del reactor de 65°C. La 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina se separa con una pureza del 99%. El rendimiento de la reacción es del 99% basado en el cloruro cianúrico.

EJEMPLO 5

Esta prueba se lleva a cabo como en el ejemplo 3, alimentando al extremo de entrada del reactor 1317 kg/hora de una solución que contiene 14% en peso de cloruro cianúrico en acetona y 492 kg/hora de una solución acuosa que contienen 12% en peso de isopropilamina y 8,12% en peso de hidróxido sódico. La temperatura de entrada de la etapa (a) es de 18°C y la temperatura

de salida es de 55°C. La etapa (b) se lleva a cabo bajo condiciones isotérmicas con una temperatura de 55°C y para esta finalidad la parte correspondiente del reactor es ta provista con medios de intercambio de calor. En la -
5 entrada de la etapa (b) se alimentan 375 kg/hora de una solución acuosa que contiene 12% en peso de monoetilamina a 10,64% en peso de hidroxido sódico. Los productos de la reacción se recuperan en el extremo de salida del reactor. La conversión de cloruro cianúrico es del 99% y la
10 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina así obtenida tiene una pureza del 99%.

= . =

15

REIVINDICACIONES

Descrito el objeto del presente invento se declaran nuevas y de propia invención las siguientes reivindicaciones:

20

1.- Un procedimiento para la preparación en continuo de cloro-bis(alquilamino)-s-triacina, por medio de la sustitución por etapas de dos átomos de cloro de cloruro cianúrico con grupos alquilamínicos, caracterizado por:

25

(a) alimentar de forma continua cloruro cianúrico en forma de una solución en un disolvente orgánico por el extremo de entrada de una primera zona de reacción tubular, alimentar de forma continua una base inorgánica, una primera alquilamina y agua a dicha primera zona de reacción tubular, alimentándose dicha base inorgánica y dicha primera alquilamina por lo menos en parte por el extremo de

30

5 entrada de dicha primera zona de reacción, alimentándose
dicho cloruro cianúrico, base inorgánica y primera alqui-
lamina en proporciones sustancialmente estequiométricas
y relacionando en dicha primera zona de reacción bajo con-
diciones de turbulencia y a una temperatura no superior
a 90°C para convertir sustancialmente por completo dicho
cloruro cianúrico en 2,4-di-cloro-6-alquilamino-6-tria-
cina, y descargar el producto reaccional de (a) por el
extremo de salida de dicha primera zona de reacción tubu-
lar;
10 (b) alimentar de forma continua dicho producto reaccional
de (a), con eventual enfriamiento y eventual separación
de la fase acuosa de dicho producto reaccional de (a),
por el extremo de entrada de una segunda zona de reacción
15 tubular, alimentar de forma continua a dicha segunda zona
de reacción una base inorgánica, una segunda alquilamina y
agua, alimentándose por lo menos en parte dicha base inor-
gánica de (b) y dicha segunda alquilamina por el extremo
de entrada de dicha segunda zona de reacción tubular,
20 alimentándose dicha 2,4-di-cloro-6-alquilamino-s-triacina,
base inorgánica de (b) y segunda alquilamina en proporcio-
nes sustancialmente estequiométricas y reaccionando en dicha
segunda zona de reacción bajo condiciones de turbulencia y
a una temperatura no superior a 100°C para convertir de
25 forma sustancialmente completa dicha 2,4-di-cloro-6-alquila-
mino-s-triacina en cloro-bis(alquilamino)-s-triacina; y
(c) descargar de forma continua el producto de reacción
de (b) de la segunda zona de reacción y recuperar la cloro-
bis(alquilamino)-s-triacina de dicho producto reaccional

de (b)

5 2.- Un procedimiento, de conformidad con la rei
vindicación 1, caracterizado porque las etapas (a) y (b) se
llevan a cabo en un solo reactor tubular, suministrándose -
directamente el producto reaccional (a) a la etapa (b) con
posible enfriamiento.

10 3.- Un procedimiento, de conformidad con la -
reivindicación 1 o 2, caracterizado porque la etapa (a) se
lleva a cabo bajo condiciones isotérmicas a una temperatu-
ra comprendida entre 30° y 90°C. o bajo condiciones adia-
báticas con una temperatura máxima que no exceda de 90°C, y
la etapa (b) bajo condiciones isotérmicas a una temperatu-
ra comprendida entre 40° y 100°C, o bajo condiciones adia-
báticas con una temperatura de entrada de por lo menos
15 20°C y una temperatura máxima no superior a 100°C.

20 4.- Un procedimiento, de conformidad con cual
quiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado
porque la etapa (a) se lleva a cabo bajo condiciones iso-
térmicas a una temperatura comprendida entre 40° y 60°C,
o bajo condiciones adiabáticas con una temperatura máxima
no superior a 70°C, y la etapa (b) bajo condiciones isotér
nicas a una temperatura comprendida entre 50° y 80°C o ba-
jo condiciones adiabáticas con una temperatura de entrada
de por lo menos 40°C y una temperatura máxima no superior
25 a 80°C.

30 5.- Un procedimiento, de conformidad con la
reivindicación 4, caracterizado porque dicha temperatura
máxima en la etapa (a) está comprendida entre 55° y 60°C.
y dicha temperatura máxima en la etapa (b) está comprende
da entre 65° y 75°C.

6.- Un procedimiento, de conformidad con cual
quiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado

porque los tiempos de reacción en dicha primera y segunda zonas de reacción son inferiores a 10 minutos.

5 7.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque el tiempo de reacción está comprendido entre 20 segundos y 2 minutos en la etapa (a) y entre 1 y 5 minutos en la etapa (b).

10 8.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicha base inorgánica utilizada en (a) y (b) se elige entre hidróxidos y carbonatos de sodio potasio y litio.

9.- Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 8, caracterizado porque dicha base inorgánica es preferentemente hidróxido sódico.

15 10.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicha primera y segunda zonas de reacción tubulares tienen una relación longitud/diámetro de por lo menos 2:1.

20 11.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicha primera y segunda zonas de reacción están provistas con agitadores, cuerpos de relleno, diafragmas parciales y/o placas con orificios.

25 12.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque dicho disolvente orgánico forma una mezcla de una sola fase o de dos fases con agua.

30 13.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque el disolvente orgánico se separa del producto reaccional de (b) mediante destilación y la cloro-bis(alquilamino)-

s-triazina se recupera del residuo de destilación resultante.

5 14.- Un procedimiento, de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones precedentes, caracterizado porque en una realización preferente la cloro-bis-(alquilamino)-s-triacina que se obtiene es la 2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-s-triacina.

15.- Un procedimiento para la preparación en continuo de cloro-bis(alquilamino)-s-triacina.

10 Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva que consta de 24 hojas foliadas y escritas por una sola cara.

Madrid, a 6 de Julio de 1978

p.a.

JAIME ISERN
p. p.

Firmado: JOSE F. NIETO

mc.