

MINISTERIO DE INDUSTRIA Y ENERGIA

Registro de la Propiedad Industrial



AH

ESPAÑA

10 ES	11 NUMERO	10 AI
	473.012	
	12 FECHA DE PRESENTACION	
	31-8-78	

PATENTE DE INVENCION

Concedido el Registro de acuerdo con los datos que figuran en la presente descripción y según el contenido de la Memoria adjunta.

30 PRIORIDADES:	32 FECHA	33 PAIS
31 NUMERO.		
878,843	17-2-78	Estados Unidos
830,261	2-9-77	Estados Unidos

47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	COTC	

54 TITULO DE LA INVENCION

UN PROCEDIMIENTO PARA LA SEPARACION DE NITROSAMINAS CONTENIDAS EN LAS DINITROANILINAS COMO IMPUREZAS.

71 SOLICITANTE (ES)

ELI LILLY AND COMPANY

DOMICILIO DEL SOLICITANTE

307 East McCarty Street, Indianapolis, Indiana 46206, Estados Unidos

72 INVENTOR (ES)

Richard Frank Eizember y Kathleen Rose Vogler, ambos de nacionalidad estadounidense.

73 TITULAR (ES)

74 REPRESENTANTE

DON BERNARDO UNGRIA GOIBURU

1 La presente invención está dirigida a un procedimiento para reducir la concentración de nitrosaminas en dinitroanilinas.

5 El artículo de Russ. Chem. Rev. 40 (1) 34-50 (1971) Eng. revisa la química de las N-nitrosaminas alifáticas, en términos generales. El artículo Anal. Létt. 6 (4) 369-72, según se resumió en Chem. Abst. 79 13291B reporta que se desnitrosaron seis nitrosaminas (no está dentro del alcance del procedimiento de la presente) mediante el empleo de cloruro de tionilo.

10 La Patente Alemana 2,035,796 Off., según se describió en Chem. Abst. 76:126964 e indica la sustitución de grupos nitroso en compuestos heterocíclicos mediante el residuo de compuestos orgánicos halogenadosactivados. La Patente Alemana 15 482,795, según se resumió en Chem. Abst, 24: 378, indica la desnitrosación de $TiCl_3$.

20 La clase de compuestos de dinitroanilina incluyen numerosos herbicidas comerciales. Recientemente, se ha desarrollado un nuevo dispositivo analítico conocido como analizador de energía térmica (AET), (J. Chromatogr. 107 (1975), 351, y las referencias ahí citadas; y "N-Nitroso Compounds in the Environment" IARC Scientific Publication #9 (International Agency for Research on Cancer, Lyon, 1974), página 40). El AET analiza específicamente el grupo nitroso (-NO), y es capaz de detectar el grupo nitroso a concentraciones tan bajas 25 como 0,02 ppm mucho menos que las técnicas analíticas anteriores. El análisis de diversas dinitroanilinas mediante el AET revela que algunas dinitroanilinas contienen cantidades muy pequeñas de nitrosaminas. Se ha mostrado que ciertas nitrosaminas son carcinogénicas en los animales. Por lo tanto, es de 30

1 seable reducir la concentración de nitrosaminas en las dinitroanilinas.

Este procedimiento ofrece una forma de reducir la cantidad de nitrosaminas presentes en la dinitroanilina y reducir la exposición de los seres humanos y del ganado a este peligro potencial.

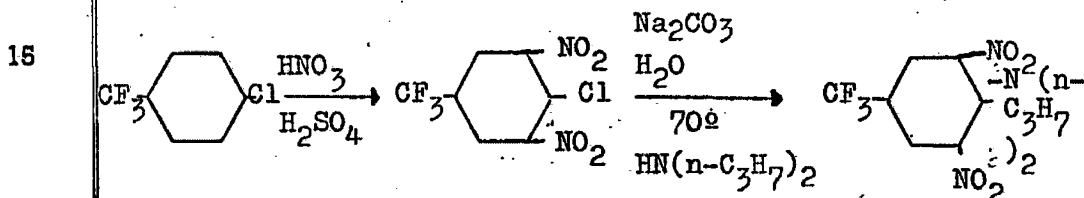
La presente invención proporciona un procedimiento caracterizado por (1) poner en contacto una dinitroanilina que contiene nitrosamina, seleccionada entre el grupo que consiste en trifluralina, isopropalina, benefina, etalfluralina, butralina, tendimetalina, flucloralina, profluralina, dinitramina, 4-trifluorometil-2,6-dinitro-3-cloro-N,N-dietilanilina, 4-metil-2,6-dinitro-N,N-bis(2-cloroetil)anilina, orizalina y nitralina, (a) en fase líquida, (b) con un reactivo seleccionado entre el grupo formado por PCl_3 , PCl_5 , PBr_3 , $POCl_3$, $SOCl_2$, $SOCl_2$, SO_2Cl_2 , $SOBr_2$ y $TiCl_4$, hasta que se ha reducido la concentración de nitrosamina, y (2) posteriormente recuperar la dinitroanilina.

Son dinitroanilinas con las cuales puede practicarse la presente invención (y sus nombres genéricos en donde sea disponible) (1) 4-trifluorometil-2,6-dinitro-N,N-di-n-propil-anilina (trifluralina); (2) 4-isopropil-2,6-dinitro-N,N-di-n-propil-anilina (isopropalina); (3) 4-trifluorometil-2,6-dinitro-N-n-butyl-N-etilanilina (benefina); (4) 4-trifluorometil-2,6-dinitro-N-etil-N-metil-anilina (etalfluralina); (5) 4-ter-butyl-2,6-dinitro-N-sec-butylanilina (butralina); (6) 3,4-dimetil-2,6-dinitro-N-(1-etilpropil)-anilina (tendimetalina); (7) 4-trifluorometil-2,6-dinitro-N-propil-N-(2-cloroetil)anilina (flucloralina); (8) 4-trifluorometil-2,6-dinitro-N-propil-N-(ciclopropilmetil)anilina (profluralina); (9) 4-trifluo-

1 rometil-2,6-dinitro-3-amino-N,N-dietilanilina (dinitramina);
(10) 4-trifluorometil-2,6-dinitro-3-cloro-N,N-dietilanilina
(intermediario a la dinitramina); (11) 4-metil-2,6-dinitro-
N,N-bis-(2-cloroetil)-anilina; (12) 4-sulfamoil-2,6-dinitro-
5 N,N-di-n-propilanilina (orizalina); y (13) (4-metilsulfonyl)-
2,6-dinitro-N,N-di-n-propilanilina (nitralina).

Las dinitroanilinas preferidas con las cuales se lle-
va a cabo la presente invención, son trifluralina, isopropali-
na, benefina y etalfluralina.

10 En términos generales, las dinitroanilinas se prepa-
ran mediante una ruta de reacción de la cual es típica la si-
guiente para la trifluralina:



20 Se cree que las pequeñas cantidades de óxidos de nitrógeno
que permanecen de la etapa de nitración, reaccionan con una
porción de la amina, durante la etapa de aminación, generan
pequeñas cantidades de nitrosamina que pueden aparecer en el
producto final de dinitroanilina. Por lo tanto, se espera que
cualquier contaminante de nitrosamina sea el derivado nitroso
25 de la alquilamina empleada. Sin embargo, se cree que pueden
también formarse cantidades excedentemente pequeñas de aún
otras nitrosaminas. La separación de las nitrosaminas, inde-
pendientemente de la identidad, es deseable, y el presente
procedimiento cumple con ese objetivo.

30 El mecanismo mediante el cual opera el presente proce

1 dimiento no es conocido con certeza, Se conoce, sin embargo,
que la nitrosamina se convierte "desnitrosa", a una sustancia
que no contiene el grupo nitrosamina. El presente procedimien
to proporciona una reducción sustancial en concentración de
5 nitrosamina, independientemente de la cantidad inicial de ni-
trosamina. En la mayoría de los casos, la concentración de ni-
trosamina se reduce a menos de 10 partes por millón.

El presente procedimiento se lleva a cabo en fase lí-
quida. En el caso de aquellas dinitroanilinas que funden a
10 temperaturas inferiores, tales como por debajo de 140°C., es-
to se logra preferiblemente calentando la dinitroanilina que
contiene nitrosamina a su temperatura de fusión o un poco más
elevada. La trifluralina funde a 54-55°C., la benefina a 65-
66°C., y la etalfluralina a 57-59°C. La isopropalina funde a
15 30°C., pero debido a impurezas menores es generalmente líqui-
da a temperaturas ambiente. Adicionalmente, puede lograrse
una fase líquida disolviendo la dinitroanilina que contiene
nitrosamina en un disolvente. Los disolventes adecuados inclu-
yen disolventes aromáticos tales como benceno y tolueno; e
20 hidrocarburos alifáticos halogenados tales como cloroformo,
cloruro de metileno y tetracloruro de carbono.

La cantidad de reactivo que va a emplearse no es crí-
tica, en tanto la cantidad sea suficiente para reducir la can-
tidad inicial de nitrosamina a una cantidad menor. En general
25 son satisfactorios de 0,1 a 2,0 gramos de reactivo por 100
gramos de dinitroanilina.

La reacción puede llevarse a cabo a temperaturas so-
bre una amplia escala, tales como de la temperatura ambiente
a 140°C. Cuando se lleva a cabo el procedimiento neto, la
30 reacción se produce a temperaturas superiores a la temperatu-

1 ra de fusión de la dinitroanilina particular. Se han obtenido
buenos resultados a temperaturas de 70 a 90°C., cuando se rea
liza el procedimiento neto con trifluralina, isopropalina, be
nefina y etalfluralina. La reacción puede llevarse a cabo a
5 presión atmosférica o a presiones elevadas.

El régimen en el cual tiene lugar el presente procedi
miento, variará con la concentración de la nitrosamina, la
temperatura, el reactivo, el régimen de su adición, y otros
factores. La presencia de agua es dañina. El progreso de la
10 separación de nitrosamina puede realizarse mediante cromato-
grafía en gas o mediante análisis de AET. La desnitrosación
es generalmente completa en menos de una hora. Los estudios
de tiempo del presente procedimiento han mostrado un descenso
inicial en los niveles de nitrosamina, seguidos en algunos ca
15 sos por una ligera elevación en los niveles de nitrosamina en
un tiempo de reacción prolongado. Se cree que una exposición
prolongada de (1) la dinitroanilina y (2) los productos de ni
trosación, a las condiciones de reacción, puede dar como re-
sultado una formación adicional de nitrosamina. Posteriormente,
20 te, es deseable la disminución de los tiempos de reacción.

La operación deseablemente toma la forma de neutrali-
zación y separación de la dinitroanilina purificada.

El siguiente ejemplo ilustra la presente invención, y
permitirá a aquellos expertos en la técnica practicar la mis-
25 ma.

A menos que se indique de otra manera, la determina-
ción de la concentración de nitrosamina en los siguientes
ejemplos se hizo mediante un método cromatográfico en gas sen-
sible por debajo de 0,5 ppm. Una lectura "no detectable" (indi-
30 cada e continuación como "N.D.") se consideró que representa

1 menos de 0,5 ppm de nitrosamina. Se utilizó un cromatógrafo
de gas Hewlett-Packard Modelo 5711A pero el método puede lle-
varse a cabo con cualquier aparato cromatográfico equipado con
un detector de ionización de flama. La columna fue un serpen-
5 tín de vidrio de 122 cm. por 0,31 cm. de diámetro interno re-
cubierto con 3% Carbowax 20 M sobre AW DMCS Chromosorb G ma-
lla 100/120, operado a 100°C. Después de que se leyó el pico
de nitrosamina, la columna se calentó a 230°C., y se mantuvo
ahí durante 15 minutos. El régimen de flujo de helio fue de
10 60 ml./min. Se empleó una norma de aproximadamente la misma
concentración de nitrosamina esperada en la muestra. Se pre-
pararon tanto la norma como la muestra en cloruro de metileno.

Aquí son indicados de esta manera aquellos ejemplos
que utilizan análisis de EAT. Los análisis mediante este méto-
15 do se llevaron a cabo esencialmente con los mismos procedi-
mientos que se describieron en J. Chromatogr. 109 (1975), 271.
En el contexto de la presente invención, se considera que es-
te método es sensible a las concentraciones de nitrosamina,
tan bajo como 0,05 partes por millón. En donde el análisis de
20 EAT de las muestras reportadas a continuación no mostró nitro-
samina, ésto se indica como "N.D."

EJEMPLO 1: SEPARACION DE LA NITROSAMINA A PARTIR DE LA TRIFLU

RALINA, PCl_3

25 Se mezclaron y se calentaron a 70°C. una porción de
30 gramos de una gran cantidad de trifluralina con un análi-
sis promedio de 68 partes por millón de nitrosamina y 0,5 gra-
mos de PCl_3 . La mezcla de reacción se mantuvo a 70°C., con
agitación, durante 1 hora. Se tomaron muestras a 30 minutos
y a 1 hora, y se analizaron en cuanto a concentración de ni-
30 trosamina. Posteriormente, la mezcla de reacción se neutrali-

1 zó con 2 ml. de solución al 10% de carbonato de sodio, las ca-
pas se separaron, y la capa acuosa se extrajo con una canti-
dad igual de cloruro de metileno. El extracto de cloruro de
metileno se analizó también en cuanto a contenido de nitrosa-
5 mina. Los resultados fueron los siguientes:

<u>Tiempo cuando se tomó la muestra.</u>	<u>Concentración de nitrosamina.</u>
30 minutos	1,2 ppm
1 hora	N.D.
10 -(extracto de cloruro de metileno)	N.D.

EJEMPLO 2: SEPARACION DE NITROSAMINA DE TRIFLURALINA, PCl_3

La reacción indicada en el ejemplo 1, se repitió, ex-
cepto que (1) únicamente se utilizaron 0,2 gramos de PCl_3 ;
15 (2) la temperatura fue de $90^{\circ}C$.; y (3) la reacción se terminó
en 30 minutos. Se analizó una muestra en cuanto a contenido
de nitrosamina, y se detectaron 0,9 ppm.

EJEMPLO 3: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA

PCl_3
20 La reacción indicada en el ejemplo 2, se repitió, ex-
cepto que se utilizaron únicamente 0,02 gramos de PCl_3 . Se
analizó una muestra en cuanto a contenido de nitrosamina; no
se detectó nada.

EJEMPLO 4: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA

PCl_3
25 La reacción indicada en el ejemplo 3 se repitió, ex-
cepto que la temperatura fué de $120^{\circ}C$. El análisis de una
muestra no mostró nitrosamina.

EJEMPLO 5: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE ETALFLURALI-

30 NA, PCl_3

1 Se calentó a 90°C. una muestra de 30 gramos de etal-
fluralina, con un análisis de nitrosamina de 8,6 ppm, se agre-
garon 0,2 gramos de PCl_3 , y la mezcla de reacción se agitó du-
rante 1 hora a 90°C. Se agregó una solución al 10% de carbona-
5 to de sodio (5 ml.) y las capas se separaron. Se tomó una
muestra de la capa de etalfluralina y se analizó en cuanto a
contenido de nitrosamina mediante AET; el análisis mostró 5
ppm. de nitrosamina.

EJEMPLO 6: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE ISOPROPALINA
10 NA PCl_3

Se separó en un evaporador giratorio, una solución de
xileno de isopropalina (50 ml., que representa 35 gramos de
isopropalina con un análisis de nitrosamina de 33,5 ppm) en
un evaporador giratorio durante 20 minutos a 90°C. Se agregó
15 PCl_3 (0,5 ml.), y la mezcla de reacción se agitó a 80°C. du-
rante 30 minutos. Se agregó a una solución al 5% de carbonato
de sodio (20 ml.), y la mezcla se agitó durante 10 minutos,
después se separó en un evaporador giratorio (15 minutos a
100°C.) y se analizó en cuanto a contenido de nitrosamina. El
20 análisis mostró 1,9 ppm. de nitrosamina.

EJEMPLOS 7-9: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURA
 LINA, SOCl_2

Se llevó a cabo una serie de tres reacciones, varian-
do la cantidad de SOCl_2 empleado, la temperatura de reacción
25 y el tiempo de reacción. En cada reacción, el SOCl_2 y una por-
ción de 30 g. de una gran cantidad de trifluralina con un aná-
lisis promedio de 68 ppm de nitrosamina, se mezclaron y se ca-
lentaron a la temperatura de reacción. La mezcla de reacción
se mantuvo a esa temperatura durante el período especificado,
30 neutralizándose después con 2 ml. de solución al 10% de carbo

1 nato de sodio. Las capas se separaron y en la primera reacción
de la serie, la capa orgánica se extrajo con una cantidad
igual de cloruro de metileno. Se analizaron muestras del con-
tenido de nitrosamina con los siguientes resultados:

5	Cantidad de SOCl_2	Temperatura de reacción	Tiempo cuando se tomó la muestra	Concentración de nitrosamina.
	Ejem.7 0,5 g.	70°C	30 minutos	22 ppm
			1 hora	11 ppm
10			extracto de cloruro de metileno	0,7 µg/ml
	Ejem.8 0,2 g.	90°C	30 minutos	3,9 ppm
	Ejem.9 0,1 g.	120°C	30 minutos	3,2 ppm

EJEMPLO 10: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE ETALFLURALINA, SOCl_2

15 Se calentó a 90°C., una muestra de 30 gramos de etalfluralina con un análisis de 8,6 ppm de nitrosamina, se agregaron 0,2 gramos de SOCl_2 , y la mezcla de reacción se agitó a 90°C. durante una hora. Se agregó una solución de carbonato de sodio al 10% (5 ml.) y las capas se separaron. El análisis
20 de la capa orgánica mediante AET mostró 0,44 ppm de nitrosamina.

EJEMPLOS 11-13: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, PBr_3

25 En una primera reacción, se calentó una porción de 30 gramos de una gran cantidad de trifluralina, con un análisis promedio de 68 partes por millón de nitrosamina, y se agregaron 0,5 gramos de PBr_3 . La mezcla de reacción se mantuvo a 70°C. durante 30 minutos, después se neutralizó con solución diluida de carbonato de sodio y las capas se separaron.
30 La capa orgánica se analizó en cuanto a nitrosamina y mostró

1 1,1 partes por millón.

La reacción se repitió esencialmente bajo las mismas condiciones, excepto que la temperatura de reacción fué de 90°C., y se utilizaron únicamente 0,1 gramos de PBr_3 . La concentración de nitrosamina se redujo a 2,3 partes por millón.

La reacción se llevó a cabo nuevamente esencialmente bajo las mismas condiciones, excepto que la temperatura de reacción fue de 120°C., y la cantidad de PBr_3 fue de 0,1 gramos. El análisis de nitrosamina no mostró nada detectable.

10 EJEMPLO 14: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, $TiCl_4$

Se calentó a 90°C. una porción de 30 gramos de una gran cantidad de trifluralina con un análisis promedio de 68 ppm, y se agregaron 0,1 ml. de $TiCl_4$. La mezcla de reacción se mantuvo a 90°C., y las muestras se separaron y analizaron periódicamente sin obrar sobre el contenido de nitrosamina. Los resultados fueron los siguientes:

	<u>Tiempo cuando se tomó la muestra</u>	<u>Concentración de nitrosamina.</u>
20	15 minutos	59 ppm
	30 minutos	16 ppm
	1 hora	21 ppm
	2 horas	3,8 ppm

25 EJEMPLO 15: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA; DICLORURO DE AZUFRE.

A 100 gramos de trifluralina fundida, se agregaron 0,2 gramos de dicloruro de azufre, y la mezcla de reacción se agitó durante una hora a 90°C. Se separaron las muestras y se analizaron en cuanto a nitrosamina, sin obrar sobre ellas.

30 Los resultados fueron los siguientes;

	<u>Tiempo cuando se tomó la muestra.</u>	<u>Concentración de nitrosamina.</u>
1	0	50 ppm
	30 minutos	7,4 ppm
5	1 hora	7,3 ppm

EJEMPLOS 16-18: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, POCl₃

Se condujeron tres reacciones con POCl₃. En cada una, se calentó a la temperatura de reacción, una porción de 30 gramos de una gran cantidad de trifluralina, con un análisis promedio de 68 partes por millón de nitrosamina, se agregó una cantidad de POCl₃, y la mezcla de reacción se mantuvo durante 30 minutos a la temperatura de reacción. La mezcla de reacción se neutralizó con carbonato de sodio y se analizó en cuanto a nitrosamina, una muestra de la capa orgánica. Las condiciones de reacción y los resultados fueron los siguientes:

	<u>Cantidad de POCl₃</u>	<u>Temperatura de reacción</u>	<u>Concentración de nitrosamina</u>
20	0,5 g.	70°C.	5 ppm
	0,1 g.	90°C.	10 ppm
	0,1 g.	120°C.	14 ppm

EJEMPLO 19: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, PCl₃, EFECTO DE BASE.

Se mezcló una porción de 30 gramos de una gran cantidad de trifluralina con un análisis de nitrosamina promedio de 68 partes por millón con 0,2 gramos de PCl₃ y 0,05 gramos de carbonato de sodio. La mezcla de reacción se calentó a 90°C., y se mantuvo a 90°C. durante 30 minutos, después se neutralizó con 2 ml. de solución al 10% de carbonato de sodio

1 y las capas se separaron. Se analizó entonces una muestra de la capa de trifluralina en cuanto a contenido de nitrosamina; no hubo detección alguna.

5 EJEMPLO 20: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, PCl_3 , ESTUDIOS DE TIEMPO.

Se calentó a 90°C. una porción de 30 gramos de una gran cantidad de trifluralina, con un análisis de nitrosamina promedio de 68 ppm, y se agregó PCl_3 (0,03 ml.). La mezcla de reacción se mantuvo a 90°C. durante dos horas, tomando y analizando muestras periódicamente. Los resultados fueron los siguientes:

	<u>Tiempo cuando se tomó la muestra.</u>	<u>Concentración de nitrosamina.</u>
	15 minutos	6,6 ppm
15	30 minutos	<1 ppm
	1 hora	4,9 ppm
	2 horas	8,5 ppm

20 EJEMPLO 21: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, SO_2Cl_2

Se calentó a 120°C. una porción de 30 ml. de trifluralina, con un análisis de nitrosamina de 36 ppm, y se agregaron 0,5 ml. de SO_2Cl_2 . La mezcla de reacción se mantuvo a 120°C., durante una hora. Se tomaron muestras a 30 minutos y 1 hora. Cada muestra se lavó con 10 ml. de agua, se secó sobre un evaporador giratorio durante 15 minutos a 60°C., y se analizó en cuanto a contenido de nitrosamina. Los resultados fueron los siguientes:

	<u>Tiempo cuando se tomó la muestra.</u>	<u>Concentración de nitrosamina</u>
	30 minutos	4
30	1 hora	2

1 EJEMPLO 22: SEPARACION DE NITROSAMINA A PARTIR DE TRIFLURALINA, PCl₅

Se repitió la reacción indicada en el ejemplo 21, excepto que se empleó PCl₅ (0,5 gramos) en lugar de SO₂Cl₂. Los resultados fueron los siguientes:

<u>Tiempo cuando se tomo la muestra.</u>	<u>Concentración de nitrosamina.</u>
30 minutos	8
1 hora	4

10 En resumen, la Patente de Invención que se solicita, deberá recaer sobre las siguientes:

REIVINDICACIONES

15 1.- Un procedimiento para la separación de las nitrosaminas contenidas en las dinitroanilinas como impurezas, estando seleccionadas dichas dinitroanilinas del grupo formado por trifluralina, isopropalina, benefina, etalfluralina, butralina, tendimetalina, flucloralina, profularila, profluralina, dinitramina, 4-trifluorometil-2, 6-dinitro-3-cloro-N,N-dietil-anilina, 4-metil-2,6-dinitro-N,N-bis(2-cloroetil)-anilina, orizalina y nitalina, cuyo procedimiento comprende:

25 a) hacer reaccionar, en fase líquida, la dinitroanilina que contiene la nitrosamina con un ácido de Lewis hasta que se haya reducido la concentración de nitrosamina, estando seleccionado dicho ácido de Lewis del grupo formado por PCl₃, PCl₅, PBr₃, POCl₃, SCl₂, SOCl₂, CO₂Cl₂, SOBr₂ y TiCl₄,

b) recuperar, posteriormente, la dinitroanilina.

30 2.- Un procedimiento según la reivindicación 1, donde la dinitroanilina está seleccionada entre el grupo

1 formado por trifluralina, isopropalina, benefina, y etalfluralina.

5 3.- Un procedimiento, según la reivindicación 2, donde la temperatura está comprendida entre la temperatura ambiente y 120° C.

4.- Un procedimiento, según las reivindicaciones 2 ó 3, donde la temperatura está comprendida entre 70° y 90° C.

10 5.- Un procedimiento, según cualquiera de las reivindicaciones 2 a 4, donde la dinitroanilina fundida constituye el líquido.

15 6.- Un procedimiento, según cualquiera de las reivindicaciones 2 a 4, donde el procedimiento se realiza con un disolvente aromático o con un hidrocarburo alifático halogenado.

20 7.- Un procedimiento, según una cualquiera de las reivindicaciones 2 a 5, donde la dinitroanilina es trifluralina, el ácido de Lewis es PCl_3 y la temperatura de reacción es de 70 a 90° C.

8.- Un procedimiento, según una cualquiera de las reivindicaciones 2, 3 y 5 donde la dinitroanilina es trifluralina fundida a 120° C y el ácido de Lewis es SO_2Cl_2 .

25 9.- Un procedimiento, según la reivindicación 1, donde la dinitroanilina está seleccionada del grupo formado por butralina, tendimetalina, flucloralina, profluralina, dinitramina, 4-trifluorometil-2,6-dinitro-3-cloro-N,N-dietilánilina, 4-metil-2,6-dinitro-N,N-bis(2-cloroetil)-anilina, orizalina y nitralina.

30 10.- Un procedimiento, según la reivindicación 9 donde la temperatura está comprendida entre la temperatura

1 ambiente y 140º C.

11.- Un procedimiento, según las reivindicaciones 9 o 10, donde la temperatura está comprendida entre 70º C y 90º C.

5 12.- Un procedimiento, según una cualquiera de las reivindicaciones 9 a 11, donde la dinitroanilina fundida constituye el líquido.

10 13.- Un procedimiento, según las reivindicaciones 9 a 11, donde el procedimiento se realiza con un disolvente aromático o un hidrocarburo alifático halogenado.

14.- Se reivindica por último como objeto sobre el que ha de recaer la Patente de Invención que se solicita:
UN PROCEDIMIENTO PARA LA SEPARACION DE NITROSAMINAS CONTENIDAS EN LAS DINITROANILINAS COMO IMPUREZAS.

15 Todo conforme queda descrito y reivindicado en la presente memoria descriptiva que consta de dieciseis páginas mecanografiadas.

Madrid, 31 Agosto 1.978

BERNARDO UNGRIA

P.P.



20

25

30