

MINISTERIO DE INDUSTRIA Y ENERGIA

Registro de la Propiedad Industrial



ESPAÑA

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

ES

11

NUMERO

479.375

A1

21

FECHA DE PRESENTACION

6-Abril-1.979

22

PATENTE DE INVENCION

30 PRIORIDADES:		
31 NUMERO	32 FECHA	33 PAIS
P 28 16 174.2	14-4-78	R.F.A.
P 29 06 606.6	21-2-79	"

47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	C07C 102/00, 103/90	

64 TITULO DE LA INVENCION

"PROCEDIMIENTO MEJORADO PARA LA PREPARACION DE N,N,N',N'-TETRAACETIL ETILENDIAMINA"

71 SOLICITANTE (S)

HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT (HOE 78/F 913K)

DOMICILIO DEL SOLICITANTE

D-6230 Frankfurt/Main 80, República Federal Alemana

72 INVENTOR (ES)

Dr. Günther Müller-Schiedmayer y Rudolf Aigner

73 TITULAR (ES)

74 REPRESENTANTE

DON ALBERTO DE ELZABURU MARQUEZ (P.-71.519)

MCS/.

1 La N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina es un
agente auxiliar importante en agentes de lavado y sirve
allí como activador de perborato. Este compuesto puede
5 prepararse conforme a la DE-OS 19 10 300 mediante reac-
ción de etildiamina o de N,N'-diacetiletildiamina con
cetena en presencia de disolventes y de catalizadores.
Sin embargo este procedimiento es técnicamente muy costo-
so y los catalizadores así como los disolventes deben ser
separados cuidadosamente a partir de la tetraacetiletilen-
10 diamina producida.

La tetraacetiletildiamina puede obtenerse tam-
bién llevando a ebullición durante largo tiempo N,N'-di-
acetiletildiamina con anhídrido de ácido acético (DE-AS
21 33 458 así como Rec. Trav. Chim., vol. 30, 1911, pági-
15 nas 183 hasta 185). El procedimiento tiene no obstante
el inconveniente de que sólo se consigue un rendimiento
relativamente malo. El color del producto no corresponde
tampoco a los requisitos.

A partir de la memoria de patente alemana 21 18
20 281 es sabido además que puede prepararse continuamente
tetraacetiletildiamina haciendo reaccionar diacetileti-
lendamina con anhídrido de ácido acético a 120 hasta
170°C, separando al mismo tiempo a partir de la mezcla de
reacción, por destilación, el ácido acético que se forma,
25 cristalizando y separando la tetraacetiletildiamina re-

1 sultante mediante enfriamiento de la mezcla de reacción,
e introduciendo después la mezcla de reacción de color
pardo oscuro remanente, en parte de nuevo en la reacción.
La eliminación del ácido acético durante la reacción se
5 efectúa mediante destilación fraccionada, empobreciéndose
continuamente la mezcla de reacción en cuanto a anhídrido
de ácido acético debido a la mala separabilidad de ácido
acético y anhídrido de ácido acético. En este procedi-
miento es necesario por consiguiente utilizar un gran ex-
10 ceso de anhídrido de ácido acético. Después de enfriar,
cristalizar y separar la tetraacetiletildiamina formada
queda una solución coloreada de oscuro en anhídrido de
ácido acético, que contiene todavía considerables propor-
ciones de los componentes de reacción que no han reaccio-
15 nado totalmente. Constituye además un gran inconveniente
en este procedimiento el hecho de que sólo de 50 hasta 90
% en peso del producto de reacción, remanente después de
la separación de tetraacetiletildiamina sólida, puede
ser devuelto de nuevo a la reacción, para no empeorar de
20 antemano el color de la tetraacetiletildiamina resultan-
te. A pesar del tratamiento de la cantidad de mezcla de
reacción retirada del circuito y de la recuperación del
anhídrido de ácido acético en exceso mediante destilación,
quedan productos secundarios en forma de residuos líqui-
25 dos, de color pardo, en una cantidad tan grande que sólo

1 puede alcanzarse un rendimiento de en total como máximo
86% en peso de tetraacetiletildiamina. También se re-
quieren tiempos de reacción relativamente largos; esto
conduce de nuevo a cantidades relativamente elevadas de
5 productos secundarios.

Objeto de la presente invención es un procedi-
miento mejorado para la preparación de N,N,N',N'-tetraace-
tiletildiamina mediante acetilación de N,N'-diacetileti-
lendiamina con anhídrido de ácido acético a una tempera-
10 tura de 120 hasta 170°C, obteniéndose un rendimiento casi
cuantitativo de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina prácti-
camente incolora sin formación digna de mención de produc-
tos secundarios inútiles. El procedimiento conforme a la
invención está caracterizado porque

- 15 a) se utilizan N,N'-diacetiletildiamina y anhídrido de
ácido acético en la proporción en peso de 1 : 1 hasta
1 : 10,
b) la acetilación se interrumpe antes de establecer el
equilibrio de reacción entre N,N'-diacetiletildiami-
20 na y N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina,
c) la mezcla de reacción coloreada de pardo obtenida se
somete después o antes de la separación de N,N,N',N'-
-tetraacetiletildiamina mediante cristalización a
una purificación para eliminar las impurezas colorea-
25 doras, y

1 d) los componentes de reacción purificados y recuperados, no reaccionados totalmente para formar N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina, son aportados de nuevo a la acetilación.

5 La acetilación de la N,N'-diacetiletildiamina se efectúa a presión normal o a presión ligeramente elevada, por ejemplo hasta aproximadamente 5 bares, preferentemente a 1 hasta 2 bares, a una temperatura de 120 hasta 170°C, preferentemente de 130 hasta 160°C. La N,N'-diacetiletildiamina se utiliza convenientemente en forma técnicamente pura; no perturban pequeñas cantidades de agua, de hasta aproximadamente 1 % en peso, ni de ácido acético, de hasta aproximadamente 5 % en peso.

10 La proporción en peso de N,N'-diacetiletildiamina y de anhídrido de ácido acético (que se emplea asimismo convenientemente en forma técnicamente pura) es de 1 : 1 hasta 1 : 10, preferentemente de 1 : 1 hasta 1 : 5, especialmente de 1 : 1 hasta 1 : 2,5.

15 Conforme a la invención, la reacción (acetilación) de N,N'-diacetiletildiamina con anhídrido de ácido acético se interrumpe antes de establecer el equilibrio de reacción entre N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina y N,N'-diacetiletildiamina, preferentemente después de alcanzar un grado de conversión de tetraacetiletildiamina de 20 hasta 70 % en moles, especialmente de 40 hasta

1 60 % en moles, referido a la cantidad molar de la N,N'-di
acetiletildiamina utilizada. Esto se efectúa convenientemente enfriando la temperatura de la mezcla de reacción (mezcla de productos) a menos de 120°C, preferentemente
5 a 20 hasta 110°C, especialmente a 60 hasta 100°C (eventualmente se interrumpe al mismo tiempo la aportación de las sustancias que han de reaccionar). El grado de conversión puede comprobarse por ejemplo analíticamente de
10 manera sencilla mediante el pesaje de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina cristalizada (determinada a partir de una porción alícuota de la mezcla de reacción). En tal caso, después de la devolución de los productos de reacción no reaccionados totalmente para formar N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina, el grado de conversión indicado
15 es referido igualmente a N,N'-diacetiletildiamina, es decir la N,N,N'-triacetiletildiamina contenida en ella, igualmente apta para la reacción ulterior, se calcula como N,N'-diacetiletildiamina.

20 La realización de la acetilación de N,N'-diacetiletildiamina con anhídrido de ácido acético se efectúa convenientemente haciendo reaccionar de modo discontinuo con agitación (para lograr un mezclado a fondo homogéneo) con anhídrido de ácido acético en la proporción en peso indicada, N,N'-diacetiletildiamina de nueva
25 aportación y los componentes de reacción no reaccionados

1 totalmente y recuperados después de la purificación con-
forme a la invención (es decir la mezcla de productos pu-
rificada y liberada de tetraacetiletildiamina y de áci-
do acético), que consisten esencialmente en una mezcla de
5 diacetiletildiamina y triacetiletildiamina. La reac-
ción discontinua se efectúa preferentemente llevando a
ebullición a reflujo en un reactor provisto con agitador
y refrigerador a reflujo. En tal caso los grados de con-
versión que han de pretenderse conforme a la invención se
10 logran por lo general después de 0,5 hasta 5 horas, pre-
ferentemente después de 1,5 hasta 3 horas.

Se ha manifestado como especialmente ventajoso
realizar la reacción continuamente en varios reactores co-
nectados sucesivamente unos tras otros, preferentemente
15 en dos hasta cinco, especialmente en dos hasta tres, reac-
tores, dispuestos para formar una cascada, provistos con
agitadores y refrigerantes a reflujo. En tal caso se in-
troducen progresivamente en el primer reactor N,N'-diace-
tiletildiamina y la mezcla de productos obtenida des-
20 pués de la purificación conforme a la invención, con anhí-
drido de ácido acético en la proporción en peso indicada.
La reacción se efectúa a temperaturas de 120 hasta 170°C,
preferentemente de 130 hasta 160°C, y éstas se eligen de
tal manera que se consigue un grado de conversión defini-
25 tivo de 20 hasta 70 % en moles, preferentemente de 40 has-

1 ta 60 % en moles de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina, referido a N,N'-diacetiletildiamina utilizada. Referidos a tetraacetiletildiamina formada se obtienen rendimientos de espacio y tiempo de aproximadamente 70 gramos/
5 litro por hora.

Por ejemplo en el caso de una cascada que consta de dos reactores, la reacción se realiza de la siguiente manera:

10 N,N'-diacetiletildiamina y la mezcla de productos obtenida después de la purificación conforme a la invención se introducen en común con anhídrido de ácido acético en la proporción de peso indicada, continuamente en el primer reactor, desde el que la mezcla de reacción coloreada de amarillo hasta ligeramente pardo circula al
15 segundo reactor. En el primer reactor se hace reaccionar hasta un grado de conversión tal que es aproximadamente 25 hasta 50 %, preferentemente 30 hasta 40 %, menor que el definitivo grado de conversión en el segundo reactor. Desde éste la mezcla de productos coloreada de pardo circula a un recipiente, donde se enfría con agitación con el
20 fin de interrumpir la reacción.

En otra forma conveniente de realización del procedimiento se añade a la mezcla de reacción eventualmente en la etapa a) cetena en una cantidad de 0,01 hasta
25 0,3, preferentemente de 0,1 hasta 0,2 partes, en peso por

1 cada 1 parte en peso de N,N'-diacetiletildiamina. La
adición se efectúa, en el caso de un modo de procedimien-
to discontinuo, preferentemente después de alcanzar la tem-
5 peratura de reacción, y en el caso de un modo de procedi-
miento continuo preferentemente en el primer reactor. Con
ello se puede conseguir una reducción del tiempo de reac-
ción y un aumento del rendimiento de espacio y tiempo.

Después de haberse interrumpido la acetilación,
conforme a la invención la mezcla de productos coloreada de
10 pardo obtenida es liberada de las impurezas coloreadoras.

La operación de purificación conforme a la in-
vención puede realizarse por ejemplo mediante extracción,
destilación o con ayuda de agentes adsorbentes, siendo pre-
feridos los dos últimos procedimientos de purificación.

15 En el caso de la purificación con agentes adsorbentes pue-
den emplearse agentes adsorbentes usuales en el comercio.
Son añadidos a la mezcla de reacción (mezcla de productos)
antes o después de la separación de la tetraacetiletildi-
20 amina; ésta es separada convenientemente mediante preci-
pitación (cristalización) por causa de un enfriamiento a
aproximadamente 0 hasta 30°C.

En el primer caso la mezcla de reacción de co-
25 lor pardo oscuro es enfriada preferentemente a 60 hasta
100°C después de terminarse (interrumpirse) la reacción,
y es mezclada con agitación con aproximadamente 0,5 hasta

1 10 % en peso, preferentemente con aproximadamente 1 hasta
5 5 % en peso, referido al peso de la mezcla de reacción,
de una tierra de blanqueo usual en el comercio, por ejem-
plo Tonsil^(R)AC o carbón activo, después de lo cual se si-
gue agitando a la misma temperatura durante aproximadamen-
te 5 hasta 30 minutos, preferentemente durante aproxima-
damente 5 hasta 10 minutos. Después de separar por fil-
tración, decantación o centrifugación el agente adsorben-
te, se obtiene una solución coloreada ligeramente de ama-
10 rillento; el tratamiento con agentes adsorbentes puede
repetirse eventualmente varias veces, preferentemente 2
a 3 veces. A partir de la solución obtenida se separa
por cristalización el compuesto tetraacetílico incoloro
después de enfriar a 0 hasta 30°C, y se elimina mediante
15 filtración, decantación o centrifugación. El filtrado co-
loreado muy débilmente después de ello, tras separar el
ácido acético resultante en la reacción, es introducido
nuevamente en el proceso de reacción (para la acetila-
ción).

20 En el segundo caso se elimina el compuesto te-
traacetílico a partir de la mezcla de productos primera-
mente, tal como se ha descrito anteriormente, mediante
cristalización. Después de adición de aproximadamente
0,5 hasta 10 % en peso, preferentemente de aproximadamen-
25 te 1 hasta 5 % en peso, referido al peso de la mezcla de

1 productos, de tierra de blanqueo o de carbón activo a
las aguas madres calientes, a una temperatura de 20 hasta
110°C, preferentemente de 60 hasta 100°C, coloreadas de
pardo oscuro, después de continuar la agitación durante
5 aproximadamente 5 hasta 30 minutos, preferentemente 5 has-
ta 10 minutos y de filtrar subsiguientemente el agente
adsorbente se obtiene una solución ligeramente amarillen-
ta, que se introduce convenientemente de nuevo en la reac-
ción (para la acetilación), después de eliminar por des-
10 tilación el ácido acético presente.

Otra posibilidad de purificación consiste en
tratar las aguas madres por destilación. En este caso la
mezcla de reacción obtenida se enfría primeramente a apro-
ximadamente 0 hasta 30°C y se separa la N,N,N',N'-tetra-
15 acetiletildiamina resultante. A partir de las aguas
madres remanentes se elimina luego por destilación el an-
hídrido de ácido acético en exceso y el ácido acético re-
sultante en la reacción. Seguidamente, el residuo es des-
tilado adicionalmente en vacío (0,4 hasta 8 milibares,
20 preferentemente 0,5 hasta 1,5 milibares) a una temperatu-
ra de 140 hasta 240°C, preferentemente de 150 hasta 200°C.
Como destilado se obtiene un líquido ligeramente coloreaa-
do de amarillo con un punto de fusión de 50 hasta 90°C,
que solidifica al enfriar. Este destilado que consta --
25 esencialmente de diacetiletildiamina y de triacetileti

1 lendumina no reaccionadas y de un poco de tetraacetiletium
lendumina no cristalizada, es aportado de nuevo a la reac-
ción con anhídrido de ácido acético (para ajustar la pro-
5 porción en peso indicada). En la parte inferior de la co-
luma de destilación resultan sólo pequeñas cantidades de
un producto de color oscuro, a modo de alquitrán, que pue-
den desecharse.

El procedimiento conforme a la invención mani-
fiesta una serie de ventajas. Mediante la combinación de
10 (a) acetilación de diacetiletendumina con anhídrido de
ácido acético, (b) interrupción de la acetilación para
formar tetraacetiletendumina antes de la reacción to-
tal de la diacetiletendumina utilizada, (c) purifica-
ción de la mezcla de reacción, obtenida al efectuar la in-
15 terrupción, respecto de impurezas colorantes, y (d) nueva
introducción de los componentes de reacción purificados,
no reaccionados totalmente para formar N,N,N',N'-tetraace-
tiletendumina para la acetilación, se ha creado un pro-
cedimiento con el que es posible la preparación de tetra-
20 acetiletendumina con un rendimiento muy elevado, mayor
de 97 %. Además de ello, la tetraacetiletendumina ob-
tenida según este procedimiento resulta también en forma
casi incolora. Una ventaja especial del procedimiento
conforme a la invención consiste además en que mediante
25 la eliminación total de los productos secundarios colorea

1 dores a partir de la mezcla de reacción, los componentes
de reacción no totalmente acetilados pueden ser aportados
de nuevo cuantitativamente a la acetilación. Con ello se
evita un enriquecimiento de los productos secundarios que
5 colorean de oscuro intenso, de tal manera que el color
del producto final permanece prácticamente incoloro. Otra
ventaja del procedimiento conforme a la invención consis-
te también en que -en comparación con los conocidos proce-
dimientos, en los que resulta hasta 15 % en peso de pro-
10 ductos secundarios, referido a diacetiletildiamina uti-
lizada - se forma una cantidad sólo insignificante de pro-
ductos secundarios no aprovechables y difícilmente elimi-
nables.

15 El procedimiento conforme a la invención puede
realizarse además de ello de manera técnicamente muy sen-
cilla, discontinua o continuamente y se requiere un tiem-
po de reacción relativamente corto, comparado con los pro-
cedimientos conocidos. Especialmente, no es necesario re-
correr el complicado camino de separar por destilación a
20 partir de la mezcla de reacción el ácido acético en la me-
dida en que éste se forma en la acetilación.

El procedimiento conforme a la invención se ex-
plica detalladamente con ayuda de los siguientes ejemplos:

Ejemplo 1

25 72,1 g de N,N'-diacetiletildiamina son lleva-

1 dos a ebullición a reflujo durante 3 horas a 140°C con
306 g de anhídrido de ácido acético. Después de ello se
enfria a aproximadamente 100°C, se añaden 9,5 g de Ton-
sil^(R)AC (tierra de blanqueo) y se agita durante 10 minu-
5 tos a 100°C. Después de ello se separa por filtración en
caliente. Al filtrado se añaden de nuevo 9,5 g de Ton-
sil^(R)AC, se agita de nuevo durante 10 minutos a 100°C,
y se separa nuevamente por filtración en caliente. La mez-
cla de reacción originalmente de color pardo oscuro se
10 vuelve de color amarillo claro mediante el tratamiento
con Tonsil^(R)AC.

La mezcla de reacción purificada es enfriada a
0°C, los cristales incoloros precipitados son filtrados
con succión y secados a 100°C en una estufa de secado en
15 vacío. El rendimiento es de 72,6 g de tetraacetiletilen
diamina. El grado de reacción, con el que fue interrumpida
la reacción, fue de 63,7 % en moles.

Las aguas madres son concentradas por evapora-
ción en vacío para la separación de ácido acético y de an-
20 hídrido de ácido acético. El residuo oleoso, de 33,1 g,
es mezclado con 47,6 g de N,N'-diacetiletilendiamina de
nueva aportación y 306 g de anhídrido de ácido acético.
La reacción y subsiguiente purificación de la mezcla de
reacción de color pardo oscuro se realizan tal como está
25 descrito. En una serie de cargas consecutivas pudieron

1. obtenerse los siguientes rendimientos de tetraacetililetilendiamina, referidos a N,N'-diacetililetilendiamina:

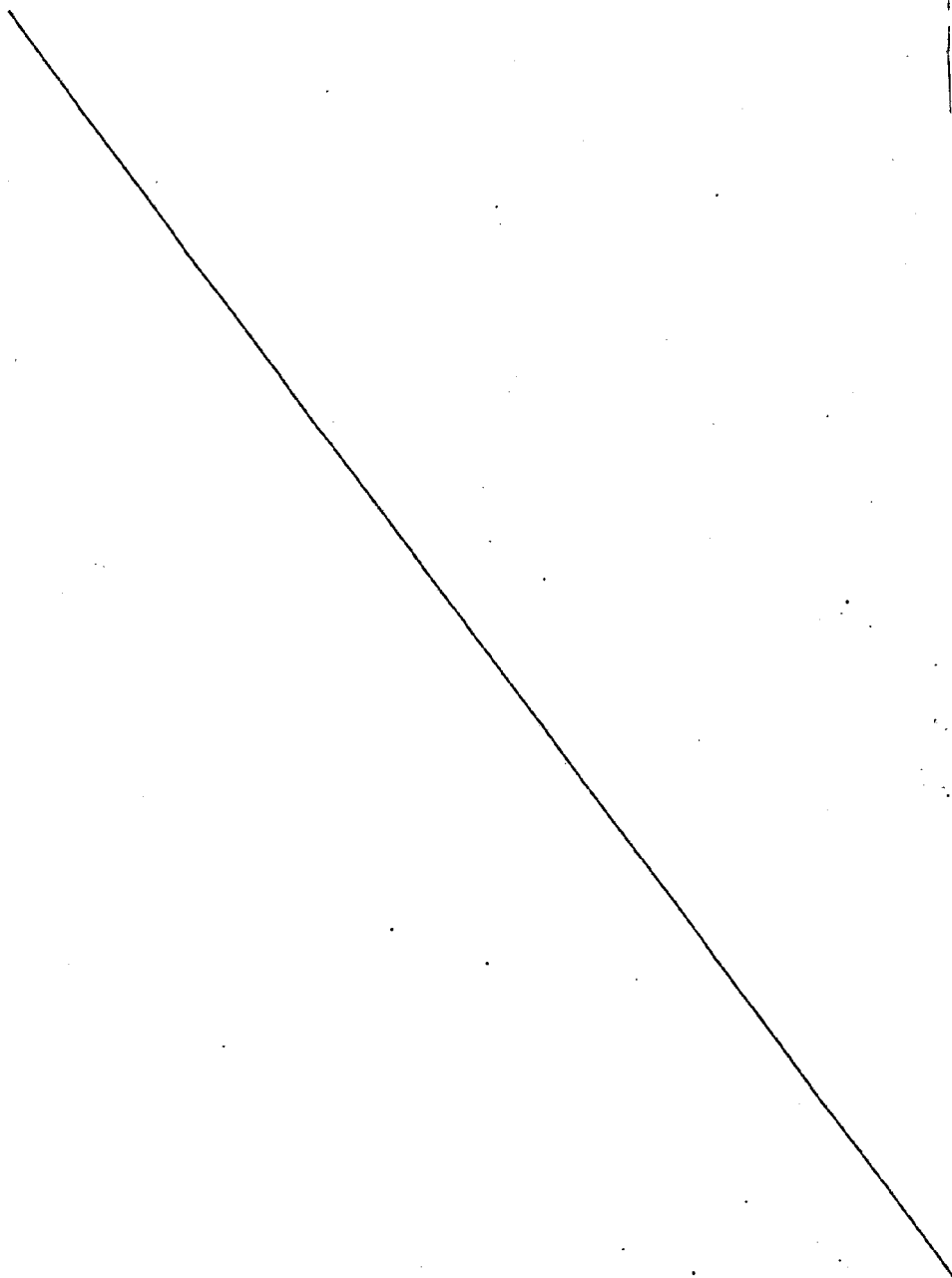


Tabla 1:

Cantidad empleada de diacetiletildiamina en g	Rendimiento de tetraacetiletildiamina en g	% en moles Rendimiento	Interrupción con un grado de reacción de % en moles
47	74,2	98,5	57,6
47	72,6	96,4	56,7
47	72,0	95,5	56,8
47	72,7	96,5	57,3
47	73,3	97,5	57,8
47	73,8	97,9	58,2
47	73,1	97,0	57,7
47	73,3	97,3	57,8

1 El rendimiento medio de tetraacetiletildiamina se hace de 97,0 %. El grado de reacción medio, con el que se interrumpe la reacción, es de 57,0 % en moles. El producto incoloro obtenido tiene un punto de fusión de
5 151°C y una pureza de 99,5 %. Una solución de 3 g de sustancia activa en 100 ml de cloroformo tiene un índice de color (APHA) menor de 10.

Ejemplo 2

72,1 g de N,N'-diacetiletildiamina son mezclados con 306 g de anhídrido de ácido acético y se hacen reaccionar con agitación a reflujo durante 3 horas a 140°C. La mezcla de reacción de color pardo oscuro es agitada durante 10 minutos a 100°C con 2 % de carbón activo Brilonit^(R) normal. Después de ello el carbón activo es separado por filtración a partir de la solución caliente. La solución originalmente de color pardo oscuro, se vuelve de color amarillo claro mediante el tratamiento con carbón activo. Después de enfriar a 15°C son separados los cristales precipitados, incoloros, de tetraacetiletildiamina. Los componentes de reacción no reaccionados, contenidos en las aguas madres, son introducidos nuevamente en la reacción después de separar por destilación ácido acético y anhídrido de ácido acético.

Ejemplo 3

25 72,1 g de N,N'-diacetiletildiamina son mezclados

1 dos con 306 g de anhídrido de ácido acético y se hacen
reaccionar a 140°C durante 3 horas. La mezcla es enfria-
da y la tetraacetiletildiamina cristalizada es separada
por filtración a 0°C. Las aguas madres de color pardo os-
5 curo son agitadas con 15 g de Tonsil^(R)AC a 100°C durante
10 minutos. Después de separar el Tonsil por filtración
se obtiene una solución de color amarillo claro. Los com-
ponentes de reacción no reaccionados, contenidos en ella,
son introducidos nuevamente en la reacción después de se-
parar por destilación ácido acético y anhídrido de ácido
acético.

Ejemplo 4

15 216 g de N,N'-diacetiletildiamina son mezcla-
dos con 900 g de anhídrido de ácido acético y llevados a
ebullición a reflujo a 140°C en un matraz con sistema de
agitación de 2 litros con refrigerante. Después de un
tiempo de reacción de 3 horas está presente una mezcla de
reacción coloreada de pardo oscuro.

20 La mezcla es enfriada a 0°C con agitación inten-
sa. Los cristales precipitados son separados y lavados
posteriormente con 50 ml de anhídrido de ácido acético en-
friado con hielo. El cristalizado es secado en vacío du-
rante aproximadamente 1 hora a 80 hasta 100°C. El rendi-
miento es de 226 g. Se interrumpe la reacción con un gra-
do de reacción de 66 % en moles.
25

1 A partir de las aguas madres de color pardo oscuro son separados por destilación ácido acético y anhídrido de ácido acético. Como residuo se obtienen 95 g de un producto oleoso, de color negro. Este se destila a
5 continuación en alto vacío a 1 milibar. La temperatura de transición se encuentra en 150 hasta 160°C. La temperatura de colas aumenta hasta 200°C. Quedan indestilables aproximadamente 4 g de una masa a modo de alquitrán. Referidos al rendimiento de tetraacetietilendiamina de
10 226 g, los productos secundarios sólo corresponden a 1,8 % en peso.

Como destilado se obtienen 91 g de líquido de color amarillo claro, que solidifica a 50 hasta 90°C. Esta masa fundida se hace reaccionar nuevamente durante 3
15 horas a reflujo a 140°C con 144 g de diacetiletildiamina y con 900 g de anhídrido de ácido acético. La mezcla de reacción es enfriada a 0°C y los cristales precipitados son separados por filtración y lavados con anhídrido de ácido acético enfriado con hielo. Las aguas madres
20 son aportadas de nuevo al tratamiento, tal como se ha descrito anteriormente. En una serie de cargas sucesivas pudieron obtenerse los siguientes rendimientos de tetraacetiletildiamina, referidos a N,N'-diacetiletildiamina utilizada.

Tabla 2:

Cantidad empleada de acetiletildiamina en g	Rendimiento de tetraacetiletildiamina en g	Rendimiento % en moles	Interrupción con un grado de reacción de % en moles
144	226	99,1	61
144	225	98,6	61
144	218	95,6	59
144	225	98,7	61
144	222	97,4	60

1 El rendimiento medio de tetraacetiletildiamina se hace de 97,9 %. El producto incoloro obtenido tiene un punto de fusión de 152°C y una pureza de 99,8 %.
5 La solución de 3 g de sustancia activa en 100 ml de cloroformo tiene un índice de color (APHA) de menos de 10.

Ejemplo 5

En una cascada de reactores a presión con sistemas de agitación, que consta de dos recipientes de agitación de 8 litros, se introducen, después de establecer el estado estacionario, por hora, 656 g de N,N'-diacetiletildiamina de nueva aportación y 2.600 g de anhídrido de ácido acético en el primer reactor. Al mismo tiempo a partir de una destilación de purificación conectada a continuación de la etapa de reacción se devuelven al primer reactor, por hora, 1.185 g de producto de reacción no totalmente reaccionado, que consta en parte de N,N'-diacetiletildiamina, del producto intermedio triacetiletildiamina y de pequeñas porciones de tetraacetiletildiamina. La temperatura se mantiene a 140°C en los dos recipientes con sistemas de agitación.

20 La mezcla de reacción se conduce para la cristalización en una cascada que consta de dos reactores de 8 litros, con envolvente de refrigeración. En el primer recipiente de cristalización se enfría con agua de refrigeración con agitación intensa a aproximadamente 30 hasta

1 35°C. En el segundo cristizador la temperatura se dis-
minuye a aproximadamente 0°C con salmuera frigorífica. La
papilla cristalina es separada por medio de un filtro de
succión respecto de las aguas madres. Los cristales son
5 lavados posteriormente con un poco de agua fría.

Después de secar a 80 hasta 100°C en la estufa
de secado se obtienen cristales con una pureza de 99,5 %
de tetraacetiletildiamina. Una solución de 3 g en 100
ml de cloroformo proporciona un índice de color APHA de 8.
10 Por cada hora se obtiene una cantidad de 1.015 g de tetra-
acetiletildiamina, que corresponde a un rendimiento de
98 %. El grado de conversión al efectuar la interrupción
es de 35 % en moles.

15 Las aguas de lavado son desechadas. A partir
de las aguas madres se separa anhídrido de ácido acético
en exceso y ácido acético formado en la reacción.

Después de eliminar la mezcla de ácido acético
y anhídrido de ácido acético a partir de las aguas madres
se obtiene un residuo oleoso, de color pardo oscuro, que
20 solidifica a aproximadamente 40°C. Por hora, resultan
aproximadamente 1.205 g de este residuo, que luego es des-
tilado en alto vacío a 0,5 hasta 1,5 milibares. El produc-
to hierve a 160 hasta 180°C. Se obtiene como destilado un
líquido de color amarillo claro, que solidifica a aproxi-
25 madamente 130°C. La cantidad resultante por hora de 1.185

1 g de destilado, es devuelto, tal como se ha descrito, al primer reactor.

5 En el caso de la destilación en alto vacío quedan aproximadamente 20 g/h de residuo a modo de alquitrán, que se desecha. Esta cantidad corresponde a aproximadamente 2 %, referido al rendimiento de tetraacetiletilendi amina.

1

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

15

20

1ª.- Procedimiento mejorado para la preparación de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina mediante acetilación de N,N'-diacetiletildiamina con anhídrido de ácido acético a una temperatura de 120 hasta 170°C, caracterizado porque a) se utiliza N,N'-diacetiletildiamina y anhídrido de ácido acético en la proporción de peso de 1 : 1 hasta 1 : 10; b) la acetilación se interrumpe antes de establecer el equilibrio de reacción entre N,N'-diacetiletildiamina y N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina; c) la mezcla de reacción coloreada de pardo, obtenida, se somete después o antes de la separación de N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina mediante cristalización, a una purificación para eliminar las impurezas coloreadoras y d) los componentes de reacción, purificados y recuperados, no reaccionados totalmente para formar N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina, son aportados nuevamente a la acetilación.

25

2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque a) se utiliza N,N'-diacetiletildi

16049

1 amina y anhídrido de ácido acético en la proporción de pe-
so de 1 : 1 hasta 1 : 10; b) la acetilación se interrump-
pe después de alcanzar un grado de reacción de N,N,N',N'-
-tetraacetiletildiamina de 20 hasta 70 % en moles, refe-
5 rido a N,N'-diacetiletildiamina utilizada; c) la mez-
cla de reacción se purifica después de la separación de
N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina, anhídrido de ácido
acético y ácido acético, mediante destilación en vacío y
d) el destilado es aportado de nuevo a la acetilación.

10 3ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª,
caracterizado porque a) se utiliza N,N'-diacetiletildi-
amina y anhídrido de ácido acético en la proporción de pe-
so de 1 : 1 hasta 1 : 10; b) la acetilación se interrump-
pe después de alcanzar un grado de reacción de N,N,N',N'-
-tetraacetiletildiamina de 20 hasta 70 % en moles, refe-
15 rido a N,N'-diacetiletildiamina utilizada; c) la mezcla
de reacción se purifica con un agente adsorbente y d) son
aportados de nuevo a la acetilación los componentes de
reacción purificados, y recuperados, no totalmente reac-
20 cionados para formar N,N,N',N'-tetraacetiletildiamina.

4ª.- Procedimiento según las reivindicaciones
1ª hasta 3ª caracterizado porque en la etapa a) se utili-
za N,N'-diacetiletildiamina y anhídrido de ácido acéti-
co en la proporción en peso de 1 : 1 hasta 1 : 5.

25 5ª.- Procedimiento según las reivindicaciones

1 1ª hasta 4ª, caracterizado porque en la etapa a) se emplea N,N'-diacetiletildiamina y anhídrido de ácido acético en la proporción en peso de 1 : 1 hasta 1 : 2,5.

5 6ª.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª hasta 5ª, caracterizado porque en la etapa a) se añaden 0,01 hasta 0,3 partes en peso de cetena por 1 parte en peso de N,N'-diacetiletildiamina.

10 7ª.- Procedimiento según la reivindicación 3ª, caracterizado porque la purificación se realiza con el agente adsorbente, llevando la mezcla de productos a una temperatura de 60 hasta 100°C, añadiendo con agitación una cantidad de agente adsorbente suficiente para la adsorción de las impurezas coloreadoras, se sigue agitando durante 5 hasta 30 minutos, y a continuación se separa por filtración el agente adsorbente.

15 8ª.- Procedimiento según la reivindicación 7ª, caracterizado porque como agente adsorbente se emplea tierra de blanqueo o carbón activo.

20 9ª.- "PROCEDIMIENTO MEJORADO PARA LA PREPARACION DE N,N,N',N'-TETRAACETILETILENDIAMINA".

Tal y como se ha descrito en la Memoria que an-

1 tecede y para los fines que se han especificado.

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

 Madrid, 25. ABR. 1979

5

P.A.

Alberto de Elzaburn
For Poder

JAC