(19) OFICINA ESPAÑOLA DE PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

(11) Número de publicación: **2 354 087**

(51) Int. Cl.:
***C07D 251/70*** (2006.01)

(12) TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA T3

(96) Número de solicitud europea: **06763407 .1**
(96) Fecha de presentación : **31.05.2006**
(97) Número de publicación de la solicitud: **1891024**
(97) Fecha de publicación de la solicitud: **27.02.2008**

(54) Título: **Método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas en polvo.**

(30) Prioridad: **06.06.2005 DE 10 2005 025 855**

(45) Fecha de publicación de la mención BOPI:
**09.03.2011**

(45) Fecha de la publicación del folleto de la patente:
**09.03.2011**

(73) Titular/es: **BASF SE**
**67056 Ludwigshafen, DE**

(72) Inventor/es: **Hirsch, Stefan;**
**Reif, Martin;**
**Ascherl, Hermann;**
**Sieder, Georg;**
**Schneider, Jörg;**
**Holtmann, Thomas;**
**Ciprian, Jürgen;**
**Eichfelder, Andreas;**
**Ehrhardt, Rainer y**
**Scherr, Günter**

(74) Agente: **Carvajal y Urquijo, Isabel**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).



Venta de fascículos: Oficina Española de Patentes y Marcas. Pº de la Castellana, 75 – 28071 Madrid

**DESCRIPCIÓN**

Método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas en polvo

La invención se refiere a un método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas en polvo a partir de una mezcla de reacción alcanólica que contiene por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina que resulta por la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas, por lo menos un éster cíclico y/o acíclico de ácido carbónico, por lo menos un alcanol $C_1$-$C_{13}$ quedado el caso contiene uno o dos átomos de oxígeno como enlace éter, y dado el caso sustituido por alquilo $C_1$-$C_4$ y/o hidroxi así como por lo menos alcanolato alcalino o alcalinotérreo, dado el caso melamina y dado el caso catalizador.

La producción de alcoxicarbonilaminotriazinas mediante reacción de triazinas, por ejemplo melamina, con ésteres del ácido carbónico en presencia de una base es conocida por ejemplo a partir de EP-A 0 624 577. Para ello por regla general se hacen reaccionar como base melamina con un éster de ácido carbónico en presencia del alcanol que sirve de base al éster de ácido carbónico y en presencia de un alcanolato alcalino basado en el alcohol que sirve de base al éster de ácido carbónico. Para la preparación se suministra a la mezcla de reacción un ácido mineral, para neutralización. Como ácidos adecuados se mencionan ácido fosfórico, ácido sulfúrico y/o ácido clorhídrico. La obtención de la alcoxicarbonilaminotriazina ocurre a continuación mediante una extracción con un solvente orgánico y la evaporación del solvente. De modo alternativo, después de la adición del ácido se aísla una materia seca, la cual es lavada y secada.

A partir de la WO-A 03/035628 se conoce un método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas, en el cual para la preparación primero que todo la mezcla de reacción es neutralizada preferiblemente con un ácido acuoso. Como ácidos adecuados se mencionan ácido nítrico, ácido sulfúrico, fosfórico o sus mezclas pero también ácido fórmico. Después de la adición del ácido a la mezcla de reacción se forma una fase acuosa y una fase alcohólica, las cuales se separan una de otra. En ello, la fase alcanólica contiene la alcoxicarbonilaminotriazina. Para la elevación de la concentración en alcoxicarbonilaminotriazina se concentra la fase orgánica, después de la separación de la fase acuosa.

Un método correspondiente para la preparación de una mezcla que contiene alcoxicarbonilaminotriazina es manifestado también en WO-A 2004/054990.

A partir de la WO-A 2004/041922 se conoce un método de producción y preparación para entrelazador decarbamato-melamina-formaldehído. En ello la preparación ocurre así mismo mediante la adición de un ácido, por ejemplo ácido sulfúrico, ácido fórmico, ácido oxálico, ácido fosfórico, ácido clorhídrico o mezclas de ellos. La sal que se forma en la neutralización es eliminada mediante filtración y lavado con agua.

A partir de US 6,512,026 se conoce un método en el cual primero que todo se destila una mezcla que contiene tri-alcoxicarbonilaminotriazina disuelta en n-butanol, después se enfría y la tri-alcoxicarbonilaminotriazina así obtenida se muele hasta polvo.

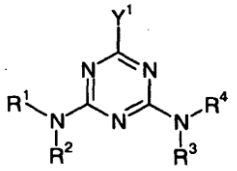
Se conocen diferentes equipos de secado, por ejemplo deDipl.-Ing. H. Berger, "Maschinen und Apparate in der chemischenIndustrie", 1968, editorial alemana VEB para la industria de materias primas, Leipzig, páginas 307-318.

Es objetivo de la presente invención poner a disposición un método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazinaen polvo que fluye libremente, a partir de una mezcla de reacción que contiene alcoxicarbonilaminotriazinaalcanólica.

Se logra el objetivo mediante un método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazina en polvo que fluye libremente, a partir de una mezcla de reacción alcanólica que contiene por lo menos una

alcoxicarbonilaminotriazina que resulta por la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas, por lo menos un éster cíclico y/o acíclico de ácido carbónico, por lo menos un alcanol $C_1$-$C_{13}$quedado el caso contiene uno o dos átomos de oxígeno como enlace éter, y dado el caso sustituido por alquilo $C_1$-$C_4$ y/o hidroxi así como por lo menos alcanolato alcalino o alcalinotérreo, dado el caso melamina y dado el caso catalizador, donde la mezcla de reacción es pulverizada y secada en un secador por atomización.

Las alcoxicarbonilaminotriazinas preferidas son las de la fórmula general (I)



(I)

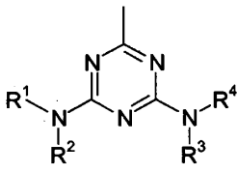
en la cual los símbolos e índices tienen el siguiente significado:

$Y^1$ hidrógeno, alquilo$C_1$-$C_4$, fenilo dado el caso sustituido por alquilo $C_1$-$C_4$, alcoxi $C_1$-$C_4$ o halógeno o un radical de la fórmula $NR^5R^6$y

$R^1$, $R^2$, $R^3$, $R^4$, $R^5$y $R^6$independientemente uno de otro en cada caso hidrógeno o un radical de la fórmula COOX oXo elegido de entre el grupo $(-CH_2-O)_1$-H, $(-CH_2-O)_l$-R, $(-CH_2-O)_kCH_2$-N(Z)-Q y $(-CH_2-O)_k$-$CH_2$-N(Z)-Q,

donde

- k representa 0 a 10, preferiblemente 1 a 5, más preferiblemente 1 o2 y en particular representa 1 y I representa 1 a 10, preferiblemente 1 a 5, más preferiblemente representa 1 o2 y en particular 1,
- R es elegido de entre el grupo de alquilo, cicloalquilo y alquiloarilo, dos de los grupos R preferiblemente contienen menos de 13 átomos de carbono y R es preferiblemente un alquilo $C_1$-$C_{13}$ y particularmente preferido metilo o butilo,
- Q es un radical triazina de la fórmula general (II)



(II)

- X representa alquilo $C_1$-$C_{13}$, cuya estructura de carbono puede estar interrumpida en la función éter por 1 o2 átomos de oxígeno no vecinos y/o puede estar sustituido por hidroxi o representa alquenilo $C_3$-$C_6$ y
- Z representa un radical $R^1$, $R^2$, $R^3$, $R^4$, $R^5$ o$R^6$, como se describió arriba, y

por lo menos uno de los radicales $R^1$a $R^4$, o cuando $Y^1$ representa $NR^5R^6$, por lo menos uno de los radicales $R^1$a $R^6$representa COOX.

En ello, alquilo $C_1$-$C_4$ significa por ejemplo metilo, etilo, propilo, isopropilo, butilo, sec-butilo otert-butilo.

Dado el caso fenilos sustituidos por alquilo $C_1$-$C_4$, alcoxi $C_1$-$C_4$o halógeno son por ejemplo, 2-, 3-o4-metilfenilo, 2-, 3- o4-etilfenilo, 2,4-dimetilfenilo, 2-, 3-o 4-metoxifenilo, 2-, 3- o 4-etoxifenilo,2,4-dimetoxifenilo, 2-, 3- o 4-fluorofenilo o 2-, 3- o 4-clorofenilo.

Alquilo $C_1$-$C_{13}$, cuya estructura de carbono pueden estar interrumpida por 1 o 2 átomos de oxígeno no vecinos en la función éter y/o sustituidos por hidroxi significa por ejemplo pentilo, isopentilo, neopentilo, tert-pentilo, hexilo, 2-metilpentilo, heptilo, octilo, 2-ehtilhexilo, isooctilo, nonilo,

isononilo, decilo, isodecilo, undecilo, dodecilo, tridecilo,isotridecilo, 2-metoxietilo, 2-etoxietilo, 2-propoxietilo, 2-butoxietilo, 2- o 3-metoxipropilo, 2- o 3-etoxipropilo, 2- o 3-propoxipropilo, 2- o 4-metoxibutilo, 2- o 4-etoxibutilo, 3,6-dioxaheptilo, 3,6-dioxaoctilo, 3,7-dioxaoctilo, 4,7-dioxaoctilo, 2- o 3-butoxipropilo, 2- o 4-butoxibutilo, 2-hidroxietilo, 2- o 3-hidroxipropilo, 2-o 4-hidroxibutilo, 3-hidroxibut-2-ilo (Las definiciones dadas arriba isooctilo, isononilo, isodeciloe isotridecilo son definiciones triviales y provienen de los alcoholes obtenidos según la oxosíntesis - ver Ullmanns Encyclopediaof Industrial Chemistry, 5ª edición, volumenA1, páginas 290 a 293, así como volumen A10, páginas 284 y 285.)

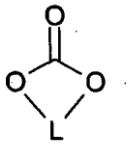
Alquenilo $C_3$-$C_6$ significa por ejemplo alilo, metalilo, etalilo, 2-, 3- o 4-penten-1-ilo o 2-, 3-, 4- o 5-hexen-1-ilo.

Son alcanoles $C_1$-$C_{13}$ que contienen dado el caso uno o dos átomos de oxígeno no vecinos como enlace éter y dado el caso sustituidos por alquilo $C_1$-$C_4$ y/o hidroxi por ejemplo metanol, etanol, propanol,isopropanol, butanol, isobutanol, sec-butanol, tert-butanol, pentanol, isopentanol, neopentanol, tert-pentanol,hexanol, 2-metilpentanol, heptanol, octanol, 2-etilhexanol, isooctanol, nonanol, isononanol, decanol, isodecanol,undecanol, dodecanol, tridecanol, isotridecanol, 2-metoxietanol, 2-etoxietanol, 2-propoxietanol, 2-butoxietanol,2- o 3-metoxipropanol, 2- o 3-etoxipropanol, 2- o 3-propoxipropanol, 2- o 4-metoxibutanol,2- o 4-etoxibutanol, 3,6-dioxaheptanol, 3,6-dioxaoctanol, 3,7-dioxaoctanol, 4,7-dioxaoctanol, 2- o 3-butoxipropanol, 2- o 4-butoxibutanol, etan-1,2-diol, propan-1,2-diol, propan-1,3-diol, 3-oxa-5-hidroxipentanol,3,6-dioxa-8-hidroxioctanol, 3-oxa-5-hidroxi-2,5-dimetilpentanol o 3,6-dioxa-8-hidroxi-2,5,8-trimetiloctanol.

Es particularmente preferido el alcanol $C_1$-$C_{13}$que contiene dado el caso uno o dos átomos de oxígeno no vecinos como enlace éter y dado el caso sustituido por alquilo $C_1$-$C_4$ y/o hidroxi elegido de entre etanol, propanol, isopropanol, butanol, isobutanol, sec-butanol, tert-butanol, pentanol, isopentanol, neopentanol, tert-pentanol, hexanol, 2-metilpentanol y heptanol.

Son muy particularmente preferidos butanol, isobutanol, sec-butanol y tert-butanol.

Un éster cíclico de ácido carbónico es un carbonato de la fórmula general (III)




(III)

en el cual

L es etileno, 1,2- o 1,3-propileno o 1,2-, 1,4-, 2,3- o 1,3-butileno.

Son por ejemplo ésteres acíclicos de ácido carbónicodiarilcarbonato, dialquilcarbonato, arilalquilcarbonatoy dialquenilcarbonato. Se prefiere el éster acíclico de ácido carbónico elegido de entre carbonatos de la fórmula general (IV)

Z1O-CO-OZ2 (IV)

en la cual

$Z^1$y $Z^2$significan en cada caso independientemente uno de otro alquilo, cicloalquilo, y arilo. Preferiblemente los radicales $Z^1$y $Z^2$ contienen menos de 13 átomos de carbono. De modo más preferido $Z^1$y $Z^2$ son un alquilo $C_1$-$C_8$ y en particular metilo o butilo.

Son dialquilcarbonatos preferidos dimetilcarbonato, dietilcarbonato, dipropilcarbonato, dibutilcarbonatoy metilbutilcarbonato.

Son arilalquilcarbonatos preferidos metilfenilcarbonato o butilfenilcarbonato.

Son diarilcarbonatos adecuados por ejemplo difenilcarbonato, di-(para-tolil)carbonato, di-(α-naftil)carbonato odi-(β-naftil)carbonato.

Un dialquenilcarbonato preferido es dialilcarbonato.

Son ésteres de ácido carbónico particularmente preferidos dimetilcarbonato, dietilcarbonato, dibutilcarbonato, metilbutilcarbonato,difenilcarbonato, propilencarbonato o mezclas de ellos.

Son alcanolatos alcalinos o alcalinotérreos adecuados por ejemplo sales de litio, sodio, potasio, magnesio o calcio de los alcanoles arriba descritos en más detalle. Se prefiere el empleo de metanolatos alcalinos, en particular de metanolato de sodio. El alcanolatoalcalino o alcalinotérreo puede ser obtenido para el empleo bien sea en forma de agregado sólido o en forma disuelta o suspendida.

Los solventes/agentes diluyentes son en este caso en particular los alcoholes descritos arriba en detalle, solos o como mezcla mutua. Pueden obtenerse para la aplicación sin embargo también otros agentes diluyentes inertes de por sí conocidos y comunes.

[0028] Catalizadores que pueden estar presentes en la mezcla de reacción son aquellos que se emplean para la producción de la alcoxicarbonilaminotriazina. Tales catalizadores son por ejemplo los de transferencia de fase como se describen en Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5ª edición, volumen A19, páginas 239 a 248. Otros catalizadores pueden ser sales o complejos metálicos, preferiblemente óxidos, chalcogenatos, carbonatos o halogenuros de los metales alcalinos, alcalinotérreos o de transición. Son de mencionar en particular cloruro de litio, cloruro de magnesio o carbonato de sodio.

De acuerdo con la invención,la alcoxicarbonilaminotriazina en polvo que fluye libremente se fabrica a partir de la mezcla que contiene por lo menos unaalcoxicarbonilaminotriazina, mediante un secado por atomización.

En ello, el secado por atomización ocurre preferiblemente en un secador por atomización como es conocido por los expertos. De este modo, para el secado por atomización pueden emplearse por ejemplo secadores por atomización comunes en el mercado con discos pulverizadores, toberas unitarias o toberas de doble fluído. La operación puede ocurrir, dependiendo del diseño, en corriente o contracorriente. Preferiblemente se emplea una tobera de doble fluído, en la cual la fase líquida que contiene por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina es pulverizada sin presión con ayuda de una corriente de nitrógeno. En ese momento, la corriente de nitrógeno exhibe una presión en el rango de 1 a 10 bar, preferiblemente en el rango de 2 a 5 bar y en particular en el rango de 2,5 a 5 bar. En ello se emplea el nitrógeno preferiblemente como gas de circulación.

El secado por atomización es llevado acabo preferiblemente a una temperatura en el rango de 50 a 250°C, preferiblemente a una temperatura de 55 a 150°C y particularmente preferido a una temperatura en el rango de 60 a 100°C y a presión ambiente o una sobrepresión o presión baja de hasta +/- 0,01 MPa, referido a la presión ambiente.

[0032] El producto del polvo obtenido mediante secado por atomización puede ser separado por ejemplo en un filtro de tela de diseño común, como filtros de bujías, filtros de saco, filtros de manga u otros filtros conocidos por los expertos, o en un ciclón. Como material filtrante para un filtro de tela son adecuados por ejemplo politetrafluoretileno, silicona o poliéster. Se prefiere el poliéster.

La limpieza del nitrógeno empleado como gas de circulación ocurre preferiblemente en un lavador. En ello se puede utilizar cualquier lavador conocido por los expertos.

En general la mezcla de reacción que contiene por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina es acondicionada, antes de ser llevada al secado por atomización. Para el acondicionamiento, en general la mezcla es neutralizada en una primera etapa, en una siguiente etapa los componentes iónicos y/o

polares son eliminados por ejemplo mediante intercambio iónico y/o extracción y en una tercera etapa puede concentrarse la mezcla de reacción. En ello, la concentración puede ocurrir bien sea antes o después del intercambio iónico o antes o después de la extracción.

En una forma de operar, para neutralizar se añade ácido a la mezcla alcanólica de reacción. En ello, el ácido puede ser añadido concentrado o diluido con agua. Se alcanza una distribución homogénea del ácido en la mezcla de reacción garantizando una adecuada mezcla durante la dosificación del ácido.

En otra forma de operar, se introduce ácido a la mezcla alcanólica de reacción. En ello, el ácido puede estar concentrado o diluido con agua.

Para la neutralización de la mezcla de reacción pueden emplearse todos los ácidos orgánicos e inorgánicos comunes y disponibles industrialmente, en cualquier concentración, preferiblemente como solución acuosa al 30-85 % en peso. Se emplean preferiblemente ácidos minerales, cuyas sales exhiben una alta solubilidad en agua, como ácido nítrico, ácido sulfúrico o ácido fosfórico. Otro ácido adecuado es el ácido fórmico. De acuerdo con la invención se prefiere particularmente el empleo de ácido nítrico.

Para la separación de los componentes iónicos y/o polares puede, antes del secado por atomización, llevarse la fase que contiene la por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina a un intercambio iónico y/o una extracción.

La extracción es ejecutada con un agente de extracción polar no completamente miscible con la fase orgánica, donde se obtiene una fase alcanólica  contiene alcoxicarbonilaminotriazina y una fase polar que contiene el agente de extracción, con sales disueltas. No totalmente miscible significa en ello que se forman dos fases con diferente composición, donde se entiende por no totalmente miscible también que el agente de extracción y la fase orgánica en general no se mezclan. Como agentes de extracción se prefiere el agua, de modo particular el agua completamente desmineralizada.

Los componentes iónicos se forman por ejemplo por la neutralización de la mezcla alcanólica de reacción mediante adición de ácido.

La neutralización de la mezcla alcanólica de reacción y la eliminación por extracción de las sales formadas por la neutralización puede ocurrir en una etapa o en etapas separadas del método. Preferiblemente, la neutralización y la eliminación de las sales formadas por la neutralización ocurren en dos etapas.

Para la extracción pueden emplearse equipos conocidos por los expertos, por ejemplo unidades de mezcla/sedimentación, columnas con o sin aplicación de energía o extractores que se basan en el principio de la separación centrífuga. Una unidad de mezcla/sedimentación abarca en general una unidad de mezcla con un recipiente de agitación, una bomba de mezcla, una toberao un mezclador estático/dinámico. Además la unidad de mezcla/sedimentación abarca un separador, el cual en general está construido como un recipiente inclinando con o sin elementos incorporados.

Son columnas adecuadas que pueden ser empleadas para la extracción, las de cuerpos de relleno, empaquetadas o de fondo perforado. Son columnas de fondo perforado adecuadas por ejemplo también las columnas de cuerpo perforado de corriente transversal. Como cuerpos de relleno pueden emplearse todos aquellos conocidos por los expertos. Tales cuerpos de relleno son por ejemplo descritos en Klaus Sattler,Thermische Trennverfahren, 2ª edición, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1995, páginas 226 a 229.

Como empaquetados son adecuados aquellos ordenados o no ordenados. Tales empaquetados son por ejemplo empaquetados estructurados, empaquetados en láminas, telas, géneros de punto o géneros de malla.

Los cuerpos de relleno, empaquetados o lechos perforados pueden ser fabricados en metal o plástico. Debido a las buenas propiedades de humectación de los metales, en la elección de la fase de lavado como material para los cuerpos de relleno, empaquetados o lechos perforadosse emplea como fase continua metal. Son metales particularmente adecuados los aceros inoxidables libres de óxido.

Aparte de la operación de las columnas con cuerpos de relleno, empaquetados o lechos con y sin pulsación, es también imaginable un empleo sin estructuras incorporadas, por ejemplo como columnas de atomización. Como ejemplos de columnas de extracción adecuadas comunes en el mercado con sistemas mecánicos de aplicación son de mencionar los extractores de disco rotatorio, columnas Old-Rushton, extractores de Kühni, extractores con celdas de agitación, extractores Graesser. Pero también pueden emplearse extractores centrífugos como extractores Podbielniak o extractores Lurgi-Westfalia.

En la extracción para la eliminación de las sales formadas por la neutralización, la fase de lavado que contiene el agente de extracción polar no totalmente miscible con la fase orgánica puede formar bien sea la fase continua o la fase dispersa de la extracción. En una forma preferida de la extracción la fase de lavado forma la fase continua.

Aparte del empleo de un aparato individual de extracción, también es posible ejecutar la extracción en varios aparatos. Aquí puede emplearse también una combinación de diferentes tipos de aparatos. En ello, una combinación preferida se forma de una unidad de mezclado/sedimentación y una columna de cuerpos de relleno. En una forma particularmente preferida de operar, la extracción para eliminar las sales formadas por la neutralización se realiza en una columna de empaquetado.

En la extracción la relación de fases de fase polar a orgánica está en un rango de0,1 a 2. Se prefiere una relación de fases en el rango de 0,15 a 1,5, particularmente preferido de 0,2 a 1 y en particular de 0,3 a 0,5.

En una forma preferida de operar, en el empleo de una columna de empaquetado para la extracción se retira la fase polar como extracto en el fondo de la columna, el refinado -la fase orgánica-sale preferiblemente como rebose libre. La fracción de fase externa, es decir el alcanol, es separado en el extracto preferiblemente mediante un tejido de punto sintético, enel fondo de la columna.

En el empleo de agua como agente de extracción polar, la fracción de fase externa, es decir la fracción de agua no disuelta en el refinado después de la separación de fases, está en general en aproximadamente 1 por ciento.

El refinado contiene el producto deseado. Si la fracción de componentes polares e iónicos en el refinado debiera ser mayor a la que permite la especificación necesaria de producto, es posible en una forma preferida de operar recircular el refinado en la alimentación. En ello, para la extracción el refinado puede alimentarse por ejemplo bien sea directamente en la alimentación o ser circulado en un tanque de balance a partir del cual se alimenta la extracción.

Los componentes polares e iónicos son por ejemplo sales alcalinas o alcalinotérreas, alcanolatos alcalinos o alcalinotérreos, ácidos, mono- y/o diésteres cíclicos o acíclicos del ácido carbónico, alcan(di)oles así como derivados polares de melamina. Los alcanodioles son por ejemplo glicol y propanodiol, derivados polares de melamina son por ejemplo melamina, mono- y di-alcoxicarbonilaminotriazinas.

Mediante la posibilidad de eliminar lasmono- y di-alcoxicarbonilaminotriazinas del refinado por extracción, es posible un ajuste adecuado de la relación de los diferentes alkoxicarbonilaminotriazinas en el refinado.

La extracción en la columna de empaquetado es llevada a cabo en general como extracción en contracorriente. En una forma particularmente preferida de operar se suministra el agente de extracción polar por encima del empaquetado y la mezcla alcanólica de reacción por debajo del empaquetado. Dentro de la columna el agente de extracción polar fluye a través del empaquetado en dirección del fondo de la columna y la mezcla alcanólica de reacción fluye a través del empaquetado en dirección de la cabeza de la columna. En el empaquetadosemezclan la mezcla alcanólica de reacción y el agente de extracción polar, donde las sales presentes en la mezcla alcanólica se desprenden al agente polar de extracción y de este modo se eliminan de la mezcla alcanólica de reacción.

La temperatura a la cual se lleva a cabo la extracción está preferiblemente en el rango de10 a 90°C, de modo particularmente preferido en el rango de 15 a 50°C.

Una presión preferida en la cual es llevada a cabo la extracción es la presión ambiente. Sin embargo, también es posible ejecutar la extracción a una presión por debajo de la presión ambiente o también a una presión elevada.Cuando se lleva a cabo la extracción a presión elevada, ésta está preferiblemente en el rango de 1 a 10 bar.

En lugar de la extracción,en otra variante del métodoes posible eliminar de la mezcla de reacción las sales mediante intercambio iónico en un intercambiador de cationes y/o intercambiador de aniones.

En una forma preferida de operar, el intercambiador de cationes y/o intercambiador de aniones está presente como intercambiador de iones de lecho sólido. En lugar del intercambiador de cationes de lecho sólido, en otra forma de operar el intercambiador de cationes y/o intercambiador de aniones pueden estar presentes como granulados.

En una forma preferida de operar se eliminan de la mezcla alcanólica de reacción los iones metálicos alcalinos y/o alcalinotérreos, con un intercambiador de cationes.

Además es posible eliminar los aniones de las sales con un intercambiador de aniones. Estos son por ejemplo - dependiendo del ácido empleado para la neutralización - iones nitrato, sulfato o fosfato o también los aniones de ácidos orgánicos, como ácido fórmico.

Una regeneración del intercambiador de aniones cargado ocurre preferiblemente con lejías minerales diluídas.Es particularmente adecuada para la generación del intercambiador de aniones la soda cáustica al 5-25%.

Una regeneración del intercambiador de cationes ocurre preferiblemente con ácidos minerales diluidos. Un ácido mineral adecuado es por ejemplo ácido clorhídrico al 5-30%.

Para el paso de varios ciclos se hace un pretratamiento tanto de la resina de intercambio de aniones como también de la resina de intercambio de cationes, en general con un promotor de disolución entre la fase orgánica y la fase polar. Para esto se enjuaga el intercambiador de iones con una sustancia que exhibe una polaridad que está entre la de la fase orgánica y la de la fase polar y que preferiblemente es miscible con ambas fases. Por ejemplo, como promotor de disolución de butanol como fase orgánica y agua como fase polar,es adecuado el metanol. Aparte de una regeneración de la resina de intercambio iónico, también es imaginable un rechazo de la resina cargada sin regeneración.

De acuerdo con la invención sonintercambiadores aniónicos adecuados por ejemplo resinas de intercambio iónico fuertemente básicas. Se prefieren las resinas de poliestireno entrelazado o copolímeros de estireno -divinil-benceno con aminas terciarias o cuaternarias como grupos funcionales e iones OH como iones de intercambio. En ello, se entiende por iones de intercambio los iones que están enlazados a los grupos funcionales y son intercambiados con los iones que van a ser eliminados del líquido. En los intercambiadores aniónicos obtenibles comercialmente, los grupos funcionales están presentes en general como sales.Aquí son por ejemplo iones $Cl^-$ enlazados al grupo

funcional. Para poder emplear los intercambiadores aniónicos, éstos son pretratados en este caso primero que todo con NaOH, para intercambiar los iones $Cl^-$ por iones OH. Son por ejemplo intercambiadores aniónicos comercialmente disponibles Lewatit® MP62, Lewatit® MP64 oLewatit® MP 600 WS de la compañía Bayer AG o también Amberjet® 4200 CL oAmbersep® 900 OH de la compañía Rohm &Haas Co. Para la eliminación de los iones nitrato se prefiere Ambersep® 900 OH y Lewatit® MP 600 WS, se prefiere particularmente Ambersep® 900 OH.

Son por ejemplo intercambiadores catiónicos adecuados resinas de intercambio catiónico fuertemente ácidas a base de poliestireno entrelazado o una matriz de copolímeros de estireno-divinilbenceno y ácido sulfónico como grupo funcional, con iones $H^+$ como iones de intercambio. Así mismo en general tanto los intercambiadores aniónicos como los intercambiadores catiónicos están presentes en su forma de sal, cuando éstos se consiguen en el comercio. Para poder emplear los intercambiadores catiónicos, éstos son pretratados con un ácido, por ejemplo ácido sulfúrico, para intercambiar los cationes de la sal por iones $H^+$. Intercambiadores catiónicos adecuados, comercialmente disponibles son por ejemplo Lewatit® S2528 oLewatit MonoPlus® S100 de la compañía Bayer AG, Amberlyst® 40 WET y Amberjet® 1500 H de la compañía Rohm & Haas Co. así como Dowex® N306 de Dow Chemical Co. Para la eliminación de los iones sodio se emplean preferiblemente Amberlyst® 40 WET y Amberjet® 1500H.

Los intercambiadores catiónicos y los intercambiadores aniónicos pueden ser empleados bien sea conjuntamente como mezcla, individualmente, o en etapas o pasos conectados consecutivamente. Para la eliminación de sales de nitrato son combinaciones adecuadas de intercambiadores aniónicos e intercambiadores catiónicos adecuados comercialmente disponibles Ambersep® 900 OH oAmberjet® 4200 como intercambiadores aniónicos y Lewatit® S2528 como intercambiadores catiónicos. Se prefiere la combinación de Ambersep® 900 OH y Lewatit® S2528.

El contacto de la mezcla alcanólica de reacción con el intercambiador catiónico y/o intercambiador aniónico puede ocurrir por ejemplo por adición del intercambiador catiónico y/o intercambiador aniónico a la mezcla de reacción, por ejemplo en el reactor o un recipiente con agitación, o que la mezcla de reacción fluya a través de un intercambiador iónico de manera continua, donde el intercambiador iónico está presente por ejemplo como empaquetado en un lecho sólido.

La adición de la resina de intercambio iónico al recipiente de reacción es entonces posible en particular cuando se produce de manera discontinua la alcoxicarbonilaminotriazina. En este caso, tanto la producción como también la neutralización y la eliminación de las sales formadas por la neutralización ocurren preferiblemente por intercambio iónico en el mismo recipiente.

En una forma particularmente preferida de operar, se elimina una parte de las sales de la mezcla alcanólica de reacción, antes del intercambio iónico mediante lavado, extracción o filtración o combinaciones de ellas.

El lavado ocurre preferiblemente mediante adición de agua a una temperatura en el rango de10 a 70°C, preferiblemente de 15 a 50°C y a un valor de pH de 0 a 8, preferiblemente 2 a 5.

Si después de intercambio iónico se lleva a cabo una extracción, ésta es ejecutada preferiblemente como se describió arriba.

En otra etapa,la mezclaalcanólica de reacción que contiene por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina puede ser concentrada antes de que ésta sea llevada al secado por atomización.

En ello, la concentración puede ocurrir mediante métodos térmicos o mecánicos. Son por ejemplo métodos térmicos de concentración adecuados evaporación, destilación o rectificación. Son métodos mecánicos adecuados en particular métodos de separación por membrana, por ejemplo pervaporación

o permeación así como filtración, cuando la por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina está presente como suspensión. El método para concentrar puede ser aplicado respectivamente en forma individual o en combinación. Para la concentración pueden emplearse también todos los otros métodos conocidos por los expertos. Un método preferido para la concentración es la destilación.

Laconcentración de la fase que contiene la alcoxicarbonilaminotriazina mediante destilación puede ocurrir de manera continua o discontinua.

Para la destilación continua pueden emplearse métodos continuos de evaporación tradicionales conocidos por los expertos. Son evaporadores adecuados para la destilación continua por ejemplo evaporadores de circulación, como el evaporador automático de circulación Robert, evaporador de circulación rápida con tubos oblicuos de evaporación, evaporador de circulación restringida con haz externo de evaporación, evaporador de circulación con espacio de evaporación dividido en cámaras o evaporador de circulación restringida con cuerpo caliente. Otros evaporadores continuos adecuados son por ejemplo los evaporadores de película descendente, evaporadores de capa delgada o evaporador Kestner.

Además, la concentración de la fase orgánica mediante destilación puede ocurrir en una columna. En ello, el calentamiento hasta la temperatura de evaporación puede ocurrir en el fondo de la columna o un intercambiador de calor ubicado en el exterior la columna. Son por ejemplo columnas adecuadas las columnas de empaquetado, columnas de cuerpos de relleno o columnas de lecho. En ello son empaquetados, cuerpos de relleno o lechos adecuados todos los empaquetados, cuerpos de relleno o lechos conocidos por los expertos.

Una concentración discontinua mediante destilación puede ocurrir por ejemplo en un recipiente con agitación. En ello puede ejecutarse también la destilación en el recipiente, en el que se lleva a cabo la reacción para dar alcoxicarbonilaminotriazina. Preferiblemente la concentración mediante destilación ocurre en un recipiente adicional con agitación.

Tanto en el método continuo como también en el discontinuo,resulta la corriente del producto que contiene alcoxicarbonilaminotriazina como una fase líquiday una corriente de vapor que contiene por lo menos un alcanol, carbonato y dado el caso agua. En el empleo de un agente polar de extracción diferente de agua para la eliminación de las sales formadas en la neutralización, el agente polar de extracción está presente en el vapor bien sea en lugar o adicionalmente al agua.

La concentración de la fase orgánica que contiene alcoxicarbonilaminotriazina mediante destilación conduce en una forma particularmente preferida de operar a una corriente de producto que contiene 45-60 % en peso de alcoxicarbonilaminotriazina.

Dependiendo de la corriente deseada de producto, sin embargo es posible obtener mediante destilación una corriente de producto que contiene una menor o también mayor fracción de alcoxicarbonilaminotriazina.

En una variante del método, la corriente de vapor formada durante el secado por atomización y dado el caso la corriente enriquecida en alcoxicarbonilaminotriazina formada por la concentración de la alcoxicarbonilaminotriazina,son separadasmediante destilación en una fase orgánica y una fase polar. En ello, la separación puede ocurrir de modo continuo o discontinuo.

En una variante preferida del método, antes de transportar la corriente de vapor de la separación por destilación, ésta puede ser condensada. Sin embargo, también es posible transportar la corriente de vapor en forma de vaho.

Si la separación por destilación es llevada a cabo de manera continua, esto ocurre preferiblemente en las columna. Son columnas adecuadas las columnas de empaquetado, columnas de cuerpos de relleno, o columnas de lecho. Como empaquetados son adecuados por ejemplo empaquetados ordenados o

géneros de punto o géneros de malla. En el empleo de columnas de cuerpos de relleno son cuerpos de relleno adecuados los conocidos por los expertos y por ejemplo manifestados en Klaus Sattler, Thermische Trennverfahren, 2ª edición, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim,1995, páginas 226 a 229.

En el empleo de una columna de lecho son adecuados por ejemplo lechos perforados,lechos de campanilla, lechos de túnel o lechos de corriente circular.

La corriente de vapor recolectada, preferiblemente condensada, puede ser conducida a la columna bien sea por la cabeza, por el fondo, o por un acceso lateral. Preferiblemente se alimenta la corriente de vapor por un acceso lateral.

Mediante la separación por destilación, se obtiene enel fondo de la columnauna mezcla de carbonato y alcanol esencialmente anhidra y en la cabeza de la columna una mezcla, libre de carbonato, de alcanoles de bajo punto de ebullición y dado el caso agua y/o agente polar de extracción.

Puede alcanzarse un mejoramiento de la recuperación del alcanol mediante la conducción de la fase de bajo punto de ebullición retirada en la cabeza de la columna hacia un separador de fases. En el separador de fases ocurre una separación en una fase que contiene esencialmente alcanol y una fase que contiene esencialmente agua y/o agente polar de extracción. Una ventaja adicional del empleo de un separador de fases es que se reduce la demanda de energía para la evaporación y condensación, que se reduce la carga de la columna y además que se reduce la pérdida de carbonato.

La fase que contiene esencialmente alcanol, obtenida desde el separador de fases en la separación de fases,es recirculada preferiblemente como retorno a la columna. Una ventaja de la recirculación de la fase alcanólicadesde el separador de fases es que el número de pasos de separación es menor que en una columna de recirculación y con ello puede reducirse la altura de la columna.

En otra variante del método se lleva la corriente condensada de vapor a un separador de fases.

En el separador de fases ocurre una separación en una fase esencialmente orgánica y una fase esencialmente polar. La fase esencialmente orgánica es llevada a la columna destilación. En esta ocurre una separación adicional en un producto defondo que contiene un carbonato y un alcanol así como un producto de cabeza que contiene un alcanol de bajo punto de ebullición y dado el caso agua y/o agente polar de extracción.

Es ventaja, frente a la variante del método en la cual la columna de cabeza sacada de la columna de destilación es llevada a un separador de fases, si la cantidad de alimentación y la fracción de agua en la alimentación se reducen fuertemente y con ello puede emplearse una columna con un diámetro menor y se reduce la demanda de energía.

En la separación continua por destilación se prefiere particularmente la variante del método en la cualla corriente que contiene agua y/o agentes polares de extracción y alcanoles de bajo punto de ebullición retirados en la cabeza de la columna destilación son llevados a un separador de fases. La relación del retorno en la columna destilación esta preferiblemente en un rango entre 0,3 y 2,8 kg/kg. La destilación es llevada a cabo preferiblemente en una columna destilación con 8 a 18 platos teóricos.

La presión a la cual es llevada a cabo la destilación esta preferiblemente en el rango entre0,5 y2000 mbar, particularmente preferido entre 50 y 950 mbar.

En la separación discontinua por destilación, a diferencia con la separación continua por destilación,no ocurre la recolección de la corriente de vapor sino que la corriente de vapor individual o bien fracciones son separados por destilación secuencialmente para la concentración. Aquí la columna de destilación empleada puede ser operada como una columna de refuerzo pura o como una columna de destilación con parte de refuerzo y parte de salida.

Cuando la columna es operada como columna de refuerzo, la alimentación del vapor se encuentra preferiblemente como alimentación lateral enel fondo de la columna. En la operación de la columna de destilación como columna pura de refuerzo se retiran todas las fracciones una tras de otra como destilado. Como primera fracción se retira como producto de cabeza una mezcla de alcanol de bajo punto de ebullición y agua y/o agente polar de extracción. Esta mezcla es separada en un separador de fases, en una fase orgánica y una fase polar. En una forma preferida de operar, se conduce la fase orgánica a continuación nuevamente a la cabeza de la columna. La fase polar es transferida hacia afuera.

Tan pronto como la cantidad de fase polar transferida hacia afuera caiga por debajo de un valor especificado, se recolecta el destilado en un recipiente intermedio. Se miden la concentración de agua o bien la concentración de agente polar de extracción en el destilado, el cual fue conducido al recipiente intermedio. Tan pronto como la concentración de agua o bien del agente polar de extracción caiga por debajo de un valor especificado, se cierra la alimentación hasta el recipiente intermedio y la fracción de alto punto de ebullición, carbonato y alcanoles de alto punto de ebullición presentes, se transfieren hacia afuera.

Cuando después de la separación de la fracción de bajo punto de ebullición, la mezcla de la corriente de destilado exhibe la composición necesaria es evidentemente necesario renunciar al recipiente intermedio y evacuar directamente la fracción de alto punto de ebullición. Una ventaja de la operación de la columna de destilación como pura columna de refuerzo es su reducida altura de columna.

La ventaja de la operación de la columna de destilación con componente de salida y de refuerzo es la alta tasa de recuperación referida al carbonato, así como un bajo consumo de energía y un reducido tiempo de destilación.

En una forma preferida de funcionar, en la operación de la columna de destilación como columna pura de refuerzo, se conduceel fondo de columna de vuelta al equipo, en el cual se concentra por destilación la fase orgánica de contiene alcoxicarbonilaminotriazina.

La variante preferida del método en la separación discontinua por destilación es aquella en la cual la columna de destilación es operada como columna de destilación con componentes de refuerzo y salida. Las ventajas de ésta variante del método son altas tasas de recuperación para carbonato comparadas con la operación de la columna de destilación como columna pura de refuerzo.

En la operación de la columna de destilación como columna de destilación con componentes de refuerzo y salida, se conduce el vapor que se forma en el secado por atomización directamente como alimentación natural de una columna de destilación. Dentro de la columna de destilación ocurre una separación en una fracción de bajo punto de ebullición y una fracción de alto punto de ebullición. En la separación por destilación se retira primero que todo, como producto de cabeza, una fracción de una mezcla la cual contiene alcanol de bajo punto de ebullición así como agua y/o agente polar de extracción. En una forma preferida de operar en un separador de fases se separa la fracción, en una fase orgánica y una fase polar. Se conduce la fase orgánica preferiblemente de nuevo como alimentación a la cabeza de la columna destilación y se saca la fase polar.

Tan pronto como la fase polar retirada cae por debajo de un valor especificado, se colecta el destilado en un recipiente intermedio. En ello, en una forma preferida de operar no se conduce el destilado, que ha sido colectado en el recipiente intermedio, a un separador de fases.

Tan pronto como la concentración de agua o bien de agente polar de extracción en el destilado cae por debajo de un valor especificado, se cierra la alimentación hasta el recipiente intermedio y se retira del fondo de la columna destilación la fracción de alto punto de ebullición. Entonces ya no ocurre más

una recirculación en el equipo en el cual se concentra la fase que contiene la alcoxicarbonilaminotriazina orgánica.

La relación de recirculación esta preferiblemente en un rango entre0 y 15 kg/kg.

Una columna de destilación preferida para la separación por destilación llevada a cabo de manera discontinua exhibe entre 4 y 10 platos teóricos. La columna es operada - como también en la separación continua por destilación -preferiblemente a una presión en el rango de 0,5 a 2000 mbar en la cabeza de la columna. De modo particularmente preferido la presión está entre 50 y 950 mbar.

En la cabeza de la columna de destilación se retiran alcanoles, dado el caso sustancias con bajo punto de ebullición y agua y/o agente polar de extracción. En una forma particularmente preferida de operar, esta corriente es conducida a continuación a un separador de fases, en el cual se separa la fase polar de la fase orgánica. Preferiblemente, la fase orgánica es conducida como recirculación nuevamente a la columna de destilación, en su cabeza.

En una forma particularmente preferida de operar, la columna de destilación incluye preferiblemente una salida lateral dispuesta en el componente de salida, sobre el cual se retira una corriente que contiene preferiblemente carbonato y alcanol en forma de vapor y esencialmente anhidro. Una posición particularmente preferida de la salida lateral está directamente encima del fondo de la columna o bien directamente bajo del elemento separador en la columna.

La ventaja de esta forma de operar radicaen la recuperación de una gran parte del carbonatopara el nuevo empleo en la reacción, la reducción del contenido de carbonato en la corriente de producto y en la recuperación en la salida lateral de alcanoles anhidros de alto punto de ebullición, por ejemplo n-butanol.

En una forma preferida de operar, la columna destilación incluye 8 a 22 platos teóricos.

La relación de recirculación de la fase orgánica en la cabeza de la columna está preferiblemente en el rango entre0,2 y 3 kg/kg.

Ejemplos

Ejemplo 1

Se nebulizaron 30 kg/h de una mezcla de 50% de trialcoxicarbonilaminotriazinay 50% de butanol en una torre secado con una tobera de dos fluidos, con un diámetro de 6 mm. Se empleó como gas para la nebulización nitrógeno con una presión de 4,5 bar y un flujo másico de 80 kg/h. Se condujo la mezcla de trialcoxicarbonilaminotriazina y butanol sin presión a la tobera de dos fluídos. El secado ocurrió en el secador por atomización bajo atmósfera de nitrógeno. Para ello se operó el secador por atomización con 1480 kg/h de nitrógeno como gas de circulación, con una temperatura de entrada del gas de 91°C y una temperatura de salida del gas de 76°C a presión ambiente. En el secador por atomización se forma un polvo blanco.

Ejemplo 2

Se nebulizaron 8g/min de una mezcla de 50% de trialcoxicarbonilaminotriazina y 50% de butanol en una torre secado con una tobera de dos fluidos con un diámetro de 0,5 mm. Como gas para la nebulización se condujeron a la tobera de dos fluidos 800l/h de nitrógeno. El secador por atomización fue operado con una sobrepresión de 18 mbar. El secado en el secador por atomización ocurrió bajo atmósfera de nitrógeno. Para ello se operó el secador por atomización con 10 $m^3$/h de nitrógeno con hojas de circulación, con una temperatura de entrada del gas de 126°C y una temperatura de salida del gas de 73°C. En el secador por atomización se formó un polvo blanco.

**REIVINDICACIONES**

1. Un método para la producción de alcoxicarbonilaminotriazina en polvo a partir de una mezcla de reacción alcanólica que resulta por la producción de alcoxicarbonilaminotriazinas, que contiene por lo menos unaalcoxicarbonilaminotriazina,por lo menos un éster cíclico y/o acíclico de ácido carbónico, por lo menos un alcanol $C_1$-$C_{13}$quedado el caso contiene uno o dos átomos de oxígeno como enlace éter, dado el caso sustituido por alquilo $C_1$-$C_4$ y/o hidroxi así como por lo menos alcanolato alcalino o alcalinotérreo, dado el caso melamina y dado el caso catalizador, donde la mezcla de reacción es nebulizada y secada en un secador por atomización.

2. Método acorde con la reivindicación 1, caracterizado porque el secado por atomización es ejecutado a una temperatura en el rango de 50 a 250°C y a presión ambiente o una sobre o baja presión de hasta +/- 0,01 MPa, referido a la presión ambiente.

3. Método según las reivindicaciones 1 o2, caracterizado porque el secado por atomización es ejecutado a una temperatura en el rango de 70 a 100°C.

4. Método según una de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado porque la alcoxicarbonilaminotriazina en polvo es separada en un filtro de tejido o en un ciclón.

5. Método según la reivindicación 4, caracterizado porque el filtro del tejido es un filtro de **bujía**, filtro de sacos o filtro de mangas.

6. Método según la reivindicación 4 o5, caracterizado porque el material de filtro es elegido de entre politetrafluoretileno, silicona y poliéster.

7. Método según una de las reivindicaciones 1 a 6, caracterizado porque la mezcla de reacción que contiene al menos una alcoxicarbonilaminotriazina es nebulizada con ayuda de una corriente de nitrógeno.

8. Método según una de las reivindicaciones 1 a 7, caracterizado porque el secado por atomización es ejecutado en una atmósfera de nitrógeno.

9. Método según la reivindicación 8, caracterizado porque como gas de circulación se emplea nitrógeno.

10. Método según la reivindicación 9, caracterizado porque el nitrógeno empleado como gas de circulaciónes purificado en un lavador.

11. Método según una de las reivindicaciones 1 a 10, caracterizado porque la mezcla de reacción que contiene por lo menos una alcoxicarbonilaminotriazina es acondicionada antes del secado por atomización, donde la mezcla es neutralizada en una primera etapa, en una siguiente etapa se eliminan los componentes iónicos y/o polares mediante intercambio iónico y/o extracción y dado el caso la mezcla es concentrada en una tercera etapa.

12. Método según la reivindicación 11, caracterizado porque la concentración ocurre antes o después del intercambio iónico o antes o después de la extracción.

13. Método según las reivindicaciones11 o12, caracterizado porque la concentración ocurre por evaporación, destilación, rectificación o método de separación por membranas.

14. Método según una de las reivindicaciones 1 a 13, caracterizado porque la corriente de vaporque se forma durante el secado por atomización y dado el caso una corriente empobrecida en alcoxicarbonilaminotriazina formada en la concentración de la alcoxicarbonilaminotriazina, son separadas por destilación en una fase orgánica y una fase polar.