

# I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

J. 72 399-IV c/390 v. 2.6. 1942

1297 Dr. W./F.

Krefeld-Uerdingen, den 30. Mai 1942

BAG - Target -

## Verfahren zur Herstellung von stickstoffhaltigen Kondensations- produkten.

Es ist bekannt, Harnstoff mit einem aliphatischen primären Diamin zu linearen Hochpolymeren zu kondensieren.

Es wurde nun gefunden, dass man lineare Hochpolymere erhält, die sich durch bedeutend gesteigerte Elastizität gegenüber den nach dem vorerwähnten bekannten Verfahren anfallenden Hochpolymeren auszeichnen, wenn man die Kondensation des Harnstoffs mit einem Gemisch aus einem Diol und einem solchen primären oder sekundären Diamin vornimmt, in dem die Aminogruppen durch eine gegebenenfalls durch Heteroatome oder Heteroatomgruppen unterbrochene Kohlenstoffkette von mindestens 3 Gliedern getrennt sind.

Als Diole sind z.B. geeignet: Äthylenglykol und seine höheren Homologen, wie 1,3-Propandiol, 1,4-Butandiol und 1,6-Hexandiol, ferner Polyglykole, wie Diglykol.

Als Diamine der vorerwähnten Art kommen z.B. in Frage: Propylendiamin, Pentamethyldiamin, Hexamethyldiamin, 3-Methylhexamethyldiamin, Dekamethyldiamin, 1,4-Butandiol-diamindipropyläther und Xylyldiamin. Anstelle der diprimären Amine können auch Amine mit sekundärem Stickstoffatom verwendet werden, z.B. Monoäthylhexamethyldiamin, N-Monobenzylhexamethyldiamin (herstellbar durch Hydrierung des Reaktionsgemisches aus Butyraldehyd und Benzaldehyd und überschüssigem Diamin) und Riperazin.

Die Kondensation erfolgt durch Erhitzen der Komponenten, vorzugsweise in annähernd molekularen Mengen. Im allgemeinen beginnt die Kondensation bei Temperaturen oberhalb 100°. Es empfiehlt sich die Temperatur mit fortschreitender Umsetzung langsam zu steigern. Das Entweichen der leicht flüchtigen Reaktionsprodukte kann durch Über- oder Durchleiten eines inerten Gases, wie z.B. Stickstoff gefördert werden. Zur Entfernung der letzten Reste der gasförmigen Reaktionsprodukte empfiehlt sich die Anwendung von vermindertem Druck.

Durch den Zusatz von Katalysatoren kann die Umsetzung beschleunigt und die Reaktionstemperatur herabgesetzt werden. Als Katalysatoren eignen sich z.B. Aluminiumchlorid, Zinnchlorid und Eisenchlorid.

Die Eigenschaften der Produkte hängen, abgesehen von der Wahl der Ausgangsstoffe, namentlich von der Höhe, der Geschwindigkeit und der Dauer des Erhitzens ab. Man erhält feste, hochelastische Massen, die in Wasser und in den meisten organischen Lösungsmitteln unlöslich sind.

Die Kondensationsprodukte können zur Herstellung von Kunststoffen, Pressmassen und Kunstfasern Verwendung finden.

#### Beispiel 1.

Eine Mischung von 116 Gewichtsteilen Hexamethyldiamin, 90 Gewichtsteilen 1,4-Butandiol und 120 Gewichtsteilen Harnstoff wird unter Rühren zunächst 1/2 Stunde auf 140-160° erhitzt. Dann wird die Temperatur langsam auf 220-240° gesteigert, bis die Ammoniakentwicklung aus der Schmelze nachlässt. Mit zunehmender Viskosität der Schmelze vermindert man den Druck im Reaktionsgefäß allmählich auf etwa 50 mm Hg. Nach dem Abkühlen erhält man 216 Gewichtsteile einer hornartigen Masse, die beim Erwärmen eine hochviskose fadenziehende Schmelze liefert.

#### Beispiel 2.

Eine Mischung von 88 Gewichtsteilen Tetramethyldiamin, 118 Gewichtsteilen 1,6-Hexandiol und 120 Gewichtsteilen Harnstoff wird etwa 1/2 Stunde auf 160° erhitzt, wobei zur besseren Entfernung des abgespaltenen Ammoniaks ein schwacher Stickstoffstrom durch die Schmelze geleitet wird. Unter allmählicher Temperatursteigerung auf 240-250° und Verminderung des Druckes im Reaktionsgefäß auf etwa 50 mm Hg erhält man eine zähflüssige, fadenziehende Schmelze, die zu einer hornartigen Masse erstarrt. Die Ausbeute an Kondensationsprodukt beträgt 230 Gewichtsteile.

#### Beispiel 3.

Eine Mischung von 200 Gewichtsteilen 1,4-Butandiol, Diäthyläther, 90 Gewichtsteilen 1,4-Butandiol und 120 Gewichtsteilen Harnstoff wird auf 140-160° erhitzt. Bei nachlassender Ammoniakent-

wicklung wird die Temperatur der Schmelze allmählich auf 230° gesteigert und die Schmelze so lange unter vermindertem Druck auf dieser Temperatur gehalten, bis sie hochviskos und fadenziehend ist. Nach dem Erkalten erhält man etwa 300 Gewichtsteile einer elastischen, hornartigen Masse.

Patentanspruch

Verfahren zur Herstellung von stickstoffhaltigen Kondensationsprodukten durch Kondensation von Harnstoff mit einem Diamin, dadurch gekennzeichnet, dass man den Harnstoff mit einer Mischung aus einem Dialkohol und einem solchen primären oder sekundären Diamin kondensiert, in dem die Aminogruppen durch eine gegebenenfalls durch Heteroatome oder Heteroatomgruppen unterbrochene Kohlenstoffkette mit mindestens 3 Gliedern getrennt sind.