

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

0.72496 IVc/39c vom 17.6.1942

Dr. W./F. 1302

Krefeld-Uerdingen, den 15. Juni 1942

BAG Target

3414 30/4.17

Verfahren zur Herstellung von linearen Polykondensationsprodukten.

Es ist bekannt, Harnstoff mit Aminoalkoholen, die durch Einwirkung von Alkylenoxyden auf Ammoniak oder Amine erhalten werden, bei Temperaturen zwischen 70-200° umzusetzen. Die nach diesem Verfahren erhaltenen Reaktionsprodukte sind amorphe, wasserlösliche Verbindungen von viskos flüssiger bis harzartiger Konsistenz. Es wurde auch bereits vorgeschlagen, Harnstoff mit 1,2-Aminoalkoholen bei einer Temperatur über 200° zu stickstoffhaltigen Kondensationsprodukten zu vereinigen. Die so erhaltenen Kondensationsprodukte sind teils flüchtig, teils fest, sie enthalten abdestillierbare Bestandteile.

Es wurde nun gefunden, dass man durch Kondensation von Harnstoff mit einem Aminoalkohol, der eine primäre oder sekundäre Aminogruppe enthält, die von der Hydroxylgruppe durch eine, gegebenenfalls durch Heteroatome oder Hetroatomgruppen unterbrochene Kette von mindestens 3 Kohlenstoffatomen getrennt ist, bei Temperaturen über 200°, vorzugsweise bei 220-280°, zu linearen Polykondensationsprodukten mit hervorragenden kunststofftechnischen Eigenschaften gelangen kann.

Als Aminoalkohole sind z.B. geeignet: 3-Aminopropanol-(1) und seine höheren Homologen, wie 4-Aminobutanol-(1), 5-Aminopentanol-(1), ferner die Reduktionsprodukte der durch Kondensation von mehreren Mengen Diolen mit Acrylnitril erhältlichen Verbindungen, wie z.B. N-Methyldiäthanolamin- ω -aminopropyläther.

Die Kondensation erfolgt durch Erhitzen der Komponenten, vorzugsweise in annähernd mol. Mengen. Sie beginnt im allgemeinen bereits bei Temperaturen oberhalb 150° unter Ammoniakentwicklung. Man steigert die Temperatur dann schnell über 200°, vorzugsweise auf 220-280°. Die Masse wird solange, gegebenenfalls in Gegenwart von Katalysatoren, wie z.B. Aluminium-, Zink- oder Eisenchlorid erhitzt, bis eine homogene zur Verformung aus dem Schmelzfluss genügend hochmolekulare Schmelze entstanden ist. Das Entweichen der leicht flüchtigen Reaktionsprodukte kann durch Über- oder Durchleiten eines inerten Gases,

wie z.B. Stickstoff, gefördert werden. Um die letzten Reste der gasförmigen Reaktionsprodukte zu entfernen, empfiehlt es sich, verminderten Druck anzuwenden.

Die Eigenschaften der erhaltenen Kondensationsprodukte hängen, abgesehen von der Art 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 Produkte geben z.T. hochviskose Schmelzen, aus denen sich spinnbare Fäden abziehen lassen. Aus den Kondensationsprodukten können Kunststoffe, Pressmassen und Kunstfasern hergestellt werden.

Beispiel 1.

Eine Mischung von 90 Gewichtsteilen 4-Amino-butanol-(1) und 60 Gewichtsteilen Harnstoff wird zunächst schnell auf 220° erhitzt, wobei oberhalb 150° lebhaft Ammoniak entwickelt wird. Sobald sich die heftige Reaktion gemässigt hat, wird allmählich innerhalb 1 Stunde auf 250° erwärmt. Die Viskosität der Schmelze nimmt hierbei erheblich zu. Man hält die Temperatur noch etwa 10 Minuten auf dieser Höhe, wobei der Druck im Reaktionsgefäß auf etwa 10 mm Hg vermindert wird. Beim Erkalten erstarrt die Schmelze zu einer hornartigen Masse, die beim Erwärmen eine hochviskose fadenziehende Schmelze liefert.

Beispiel 2.

Methyl- 176 Gewichtsteile N-Methyl-diäthanolamin- ω -aminopropyläther (erhältlich durch Reduktion des Anlagerungsproduktes von Acrylnitril an Diäthanolamin) wird mit 60 Gewichtsteilen Harnstoff 142-2 Stunden auf $230-240^{\circ}$ erhitzt, wobei durch die Schmelze ein gelinder Stickstoffstrom geleitet wird, um Oxydation zu vermeiden und das in grossen Mengen im Reaktionsgemisch gebildete Ammoniak zu entfernen. Nach dem Erkalten erhält man eine glasige, zähe Masse, die beim Erwärmen stark fadenziehend wird.

Patentanspruch.

Verfahren zur Herstellung von linearen Polykondensationsprodukten durch Kondensation von Harnstoff mit Aminoalkoholen, dadurch gekennzeichnet, dass man Harnstoff mit solchen Aminoalkoholen, die eine primäre oder sekundäre Aminogruppe besitzen, die von der Hydroxylgruppe durch eine, gegebenenfalls durch Heteroatome oder Heteroatomgruppen unterbrochene Kette von mindestens 3 Kohlenstoffatomen getrennt ist, bei Temperaturen oberhalb 200° kondensiert.